

豚のふん尿処理に伴う環境負荷ガスの発生

著者	長田 隆
雑誌名	畜産草地研究所研究報告
巻	2
ページ	15-62
発行年	2002-12-26
URL	http://doi.org/10.24514/00001958

doi: 10.24514/00001958

豚のふん尿処理に伴う環境負荷ガスの発生

長田 隆

畜産環境部

要 約

標準的な養豚経営の単位家畜あたりのふん尿由来の環境負荷ガス発生総量を算定し、その抑制条件を検討した。肥育全期間中（8週間、20kg～80kgの増体期間）に畜舎内でアンモニア（ NH_3 ）、亜酸化窒素（ N_2O ）およびメタン（ CH_4 ）が発生する量は、それぞれ181、9.1および302g/頭と試算された。豚ふん尿汚水浄化処理からの放出推定値として、 NH_3 については検出限界以下、 CH_4 については1.8～7.4g CH_4 /頭、 N_2O については10.7～37.5g N_2O -N/頭の発生が試算された。堆肥化過程からの放出推定値として、発生は NH_3 が133～325g NH_3 -N/頭、 CH_4 が0.2～129g CH_4 /頭および N_2O が0.7～6.4g N_2O -N/頭と試算された。発生抑制には、 NH_3 については肥育豚舎からの放出抑制と堆肥化過程からの物理的捕集、 N_2O については間欠曝気法の適用、 CH_4 については堆肥化を好氣的条件で行うことが有効と考えられた。

キーワード：アンモニア、亜酸化窒素、メタン、堆肥化、汚水処理

第1章 序論

本論文は「豚のふん尿処理に伴う環境負荷ガスの発生」と題し、畜産系から発生する環境負荷のうち、未知部分の多い環境負荷ガス（アンモニア、メタン、亜酸化窒素）の発生についての報告である。特に養豚業のふん尿処理を対象にした。これは養豚業では専門化が進み自家保有の耕作地を持たない経営がほとんどとなり、家畜排泄物処理の緊急性がより高くなっているためであり、ここではもっとも一般的な固液分離型のふん尿処理を想定して行った。各種ガス発生が顕著である畜舎内及びふん尿処理（汚水処理、堆肥化処理）の各段階から発生する対象ガスの揮散量を把握するとともに、その発生要因を解析し、抑制手法を検討するものである。

1) 背景

家畜ふん尿は多くの肥料成分や有機物を含み、作物への養分供給だけでなく土壌の物理性改良や生物の多様性を保持するなどにも効果が認められた資材である。しか

し、栽培体系や農業全体の構造の変化とともに使用範囲が限定され、国内最大の有機性産業廃棄物という負の側面が強調されるケースも少なくない。

家畜ふん尿の総発生量及びそこに含まれる窒素・リンの量は、日本飼養標準を基にした算定⁵⁾によれば表1-1のようになる。ふん尿量9,400万トン、窒素総量74万トンでありリンは12万トンと推定される。

この量は化学肥料として年間消費される窒素（60万トン）及びりん（32万トン）と比肩しうる膨大な量である。現在、畜産経営においては家畜のふんや尿に起因する土壌汚染、水質汚濁や悪臭公害を防止するため、家畜排泄物の適切な処理・利用が模索されている。本来、家畜排泄物は肥料として農業利用されることが望ましい資源である。しかし化学肥料使用が主体となった現行の肥培体系のなかでは質的にも使いにくく、量的にも膨大であるために、利用されずに投棄される事例も少なくない。このため各畜産経営の飼養形態や畜舎構造等によって、また、地域環境によってさまざまな家畜排泄物の処理技術が導入されている。

畜産経営の導入される処理技術は、家畜排泄物を資源として利用するための技術（メタン発酵や堆肥化等）と

表 1-1 家畜排泄物および窒素・リンの年間排泄量 (築城の算定を基に原田が作成)

The number of livestock and annual product of their waste, nitrogen and phosphorus. (1997)

Type	Number (Thousand)	Livestock Waste (Thousand tons)			N and P in Waste (Thousand tons)	
		Feces	Urine	Total	Nitrogen	Phosphorus
Daily Cattle	1,898	24,039	7,103	31,142	158.7	22.1
Beef Cattle	2,852	19,308	7,103	26,411	144.7	15.8
Pig	9,824	7,971	14,802	22,773	128.8	33.7
Layer	183,765	8,065		8,065	196.1	33.8
Broiler	114,314	5,424		5,424	109.3	12.1
Total		64,807	29,008	93,816	737.6	117.6

家畜排泄物中の環境負荷原因物質を対象から除去するための浄化技術(汚水浄化や悪臭除去等)に大別できる。これらの技術は、それぞれ、目的生産物である生成物質(メタンや堆肥等)の質や生産量によって、あるいは汚濁物質や悪臭原因物質の除去効果で主に評価されている。経済活動である畜産業では、さらに経済性を考慮して、導入される排泄物処理システムが決定される。

しかしながら、導入された処理技術が環境汚染の防止につながらない事例も少なくない。処理技術が本来の汚染防止技術として機能しないばかりでなく、二次的に悪臭や水質汚濁等の環境負荷を新たに発生させるケースもある。この原因は不適切な管理や処理容量を越えた汚濁物質の投入などによるものとされてきた。処理技術の多くは微生物活動を利用した生物処理であるため、処理対象となる汚濁物質の性状や負荷によって、処理効率ばかりでなく、反応自体も影響される。通常は副次的に起こっていた反応が主体的反応となり、新たな環境負荷物質を生成し、処理が処理でなくなる事例も想定される。しかし、これまで処理・利用の目標達成以外の項目での処理技術に対する評価はほとんどなされて来なかった。

昨今、人間活動が地球規模の気候変動に及ぼす影響について科学的根拠をもって指摘されるようになり始め、人為的に発生する物質の動態が国際的に議論の対象となってきた¹⁵⁾。農業系からもアンモニアの揮散が酸性雨の原因として以前より指摘を受け、オランダでは発生抑制に行政が取り組みを始めている。これに加え、地球規模でおこる異常気象、環境問題、特に地球温暖化問題に対処するため、国連のもと、「気候変動に関わる政府間パネル」が置かれ、1997年12月には「気候変動枠組条約締結国会議(COP3)」で1990年レベルの温暖化ガス排出に対する各国の削減値を盛り込んだ議定書(通称 Kyoto protocol)が採択された。

温暖化効果の大きさから、メタンと亜酸化窒素に関しても削減対象ガスとなった。GWP(地球温暖化能力)

という概念¹⁴⁾で、CO₂の温暖化効果に比べ、分子あたりCH₄は26倍、N₂Oは270倍の影響力が見積もられている。また人為的発生源のメタンは約50%、亜酸化窒素は約60%が農業系からの寄与と推定されているものの極めて推定精度が低く実態把握が急務となっている¹⁵⁾。

これらの環境負荷ガスは、有機性廃棄物である家畜排泄物の取り扱い過程からも発生する可能性がある。Hartung & Phillips¹¹⁾の総説によれば、畜舎やふん尿の取り扱いからは130種を越える環境負荷物質の揮散が認められるが、その発生量の定量的な把握はアンモニアを除いて行われていない。最も発生量の測定事例が多い畜舎におけるアンモニア発生量についても、その単位動物当たりの発生量は季節的、時間的な変動の大きさからばらつきが大きい。ふん尿処理に関しては、ふん尿を混合状態(スラリー)で圃場に散布する事が主流である欧米には、スラリー貯留・散布時のメタン等の揮散に関する基礎的な報告が出始めたばかりであり(CIGR symposium Ammonia and Odour Control from Animal Production Facilities (1997), ASAE Livestock environment symposium V (1997)), 発生量を定量的に捕らえた研究はほとんど行われていない。すなわち、家畜ふん尿の取り扱い全体を対象とし、揮散物質の発生量を定量的に測定した事例はなく、総合的に発生抑制を目指した研究事例はほとんど見あたらない。

2) 試験の目的

本研究の目的は、食肉用に豚1頭が生産される際に発生する環境負荷ガスを算出するものである。本研究では、特に専門化が進み自家保有の耕作地を持たない経営がほとんどとなり、家畜排泄物処理の緊急性がより高い養豚経営のふん尿処理を想定し、ここから発生するアンモニア、メタン及び亜酸化窒素について検討した。

ふん尿処理方法の実体については、一定規模以上の乳用牛、肉用牛、豚、採卵鶏の飼養農家に対し、農林水産

省統計情報部が最近行った調査がある（表 1-2 および表 1-3、農林水産省統計情報部²⁷⁾）。「家畜ふん尿処理の状況」（表 1-2）によれば、中・小家畜の豚・採卵鶏では「自家処理施設」による処理が最も多い。

さらに自家処理施設を用いた場合の処理方法（表 1-3）をみると、養豚農家においては尿処理に浄化処理を選択（62%）し、固形分処理に堆肥化（「強制発酵」と「堆積発酵」）を採用している。

本研究では、標準的な養豚経営の排泄物処理工程に合わせ、a) 家畜排泄物が貯留される畜舎、これらが運び出されて固液分離された後の、b) 汚水浄化処理と c) 堆肥化処理からの各ガス発生量を定量的に測定し、単位家畜あたりのふん尿由来の発生総量を算定し、その抑制条件を検討した。

第 2 章 試験装置と実験方法

1) 試験装置

各試験系から対象ガス発生量を算定するためには、試験系へ持ち込まれた物質質量と排出される物質質量が把握される必要がある。固形物、液状物については通常の試験装置（堆肥化試験装置、汚水浄化試験装置および飼養試験畜舎）で対応が可能である。しかし、気体として発生する物質の把握には、発生気体が漏れてしまわぬような特別な工夫が必要である。

微生物の培養試験に使われるバイアル瓶のように気体を閉じこめた系、及び気密性の高い容器による試験系は総ガス量の把握には理想的な実験系ではある。しかし、この実験系内で堆肥化や汚水を浄化する活性汚泥処理を

表 1-2 家畜のふん尿処理の状況別戸数割合

The ratio of the farm conduct several treatment for livestock waste (%)

	Type	Number of Farms	Treated in their farm	Treated in cooperated facilities	Other Facilities	Out of Treatment Facilities					
						Used in own land	Stock in the pond	Stock in the barn	Changes to bedding materials	Processing contractor	Others
Daily Cattle	Feces	100	20	4	1	52	0	0	13	0	3
	Urine	100	13	1	0	77	8	0	1	0	4
	Mixture	100	34	7	2	45	1	30	10	0	5
Beef Cattle	Feces	100	43	7	4	30	0	19	8	2	5
	Urine	100	32	7	2	49	5	0	1	0	9
	Mixture	100	56	14	5	19	1	18	8	2	9
Pig	Feces	100	74	15	1	7	0	9	2	2	4
	Urine	100	57	9	1	21	11	0	0	1	9
	Mixture	100	62	15	3	12	7	7	1	2	8
Layer	Feces	100	80	9	3	5	0	3	0	2	14

表 1-3 自家処理施設の処理方法別戸数割合

The ratio of the farm introduced several waste or wastewater treatment facilities for livestock waste (%)

	Type	Number of Farms	Drying (Solar power)	Drying (Fossil fuel)	Composting (Forced aeratration)	Composting (Piling)	Combustion	Purification	Stock	Others
Daily Cattle	Feces	100	14	0	22	67	1	0	0	1
	Urine	100	0	0	10	0	0	11	75	5
	Mixture	100	14	0	32	42	0	1	14	2
Beef Cattle	Feces	100	3	0	28	73	1	0	0	22
	Urine	100	0	0	29	0	0	7	62	4
	Mixture	100	7	0	40	52	0	0	1	2
Pig	Feces	100	9	1	62	31	1	0	0	2
	Urine	100	0	0	17	0	0	61	23	5
	Mixture	100	10	0	47	33	0	7	9	3
Layer	Feces	100	43	5	42	21	4	0	0	2

再現することは極めて困難であり、実際の処理系を評価するには不向きである。実験系の主体となる生物活性（たとえば堆肥化や污水浄化）に影響を及ぼさない範囲で気体の流れを制御し、各試験系への流入気体と排出気体を経時的に把握しうる実験系が望ましい。この実験系を用いることで、単位時間当たり環境負荷ガス発生量は、試験系への導入される空気（給気）と試験系から排出される空気（排気）の各ガス濃度を一定時間間隔で測定してその差異を算出し、測定単位時間の換気量（通気量）との積で求めることができる。

単位時間ガス発生量 (Total Emission) =

$$\begin{aligned} & (\text{排気中の対象物質濃度 (mg m}^{-3}\text{)} \\ & - \text{給気中の対象物質濃度 (mg m}^{-3}\text{)}) \\ & \times \text{単位時間の換気量 (m}^3 \text{hour}^{-1}\text{)} \end{aligned}$$

さらに、試験系の堆肥化あるいは污水处理の全期間、

あるいは家畜飼養の期間全体を評価することで単位ふん尿あたりからの対象ガス発生量が算出される。

そこで試験装置は、

- 1) 給気と排気が管理でき、濃度測定のためのサンプリングが容易であり、換気量が測定できる構造であること。
- 2) 家畜生産、堆肥化处理や污水浄化处理の1サイクルが完全に行うことができ、それぞれのシステム全期間が評価できること。

以上の要件を満たすものである必要がある。

a) 実験畜舎

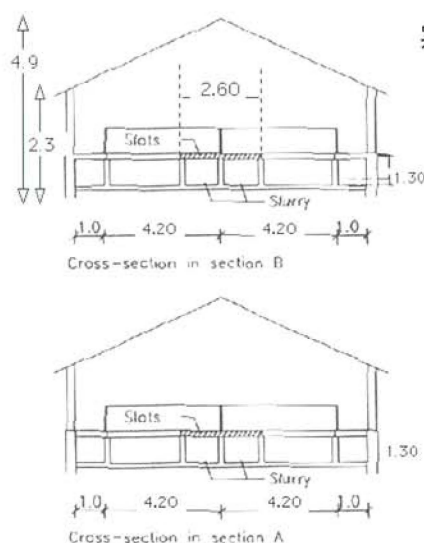
デンマーク農業研究所 Bygholm 試験地の実験畜舎を用いて実験を行った（写真2-1）。本施設は、4豚房をもつ飼養管理室2室とデータ管理室（写真2-2）からなり、おのおの独立した給気と排気ダクトを備えている



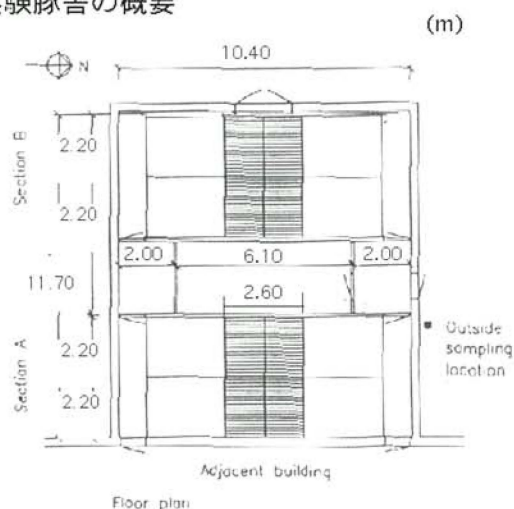
写真2-1 実験畜舎外観



図2-1 実験畜舎内部



実験豚舎の概要



1. Climatics Laboratory at Research Centre Bygholm

図2-2 実験畜舎内部（平面図）



写真 2-2 測定管理室

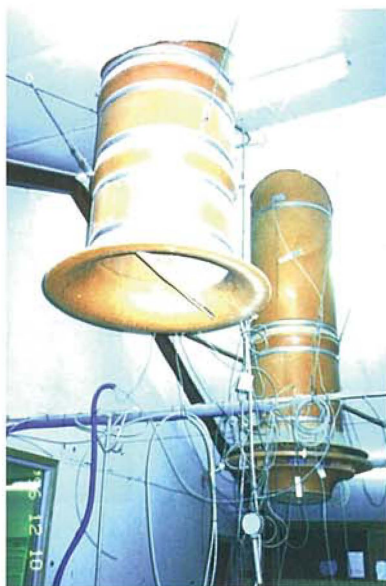


写真 2-3 飼養試験室内部（左：入気・排気口、右：すのこ）

(図2-1、写真2-3)。床面積45.8m²で容積165m³の実験施設は、強制換気システムで、給気および排気が各1個のダクトで管理され、ふん尿は部分すのこの床面を通して地下のふん尿槽に貯留される(写真2-2、図2-2)。温風機と換気量の調整によって室内温度を16～17℃に保ち、40頭の肥育豚を30kgから90kg程度まで約8週間の全肥育期間飼養した。肥育豚は10頭ずつ4豚房に分割して飼育し、飼料は各区画に飼料槽をおき自由摂取とした。

b) 汚水浄化試験装置

有効容積3Lの回分式活性汚泥装置（高崎科学）を用いて試験を行った（TJM-5W改造品，全容積5L：図2-3，写真2-4）。本装置は2機の試験槽を備えた污水試験装置であり，試験槽（直径15.3cm×最深部28cm）は培養槽と一体になったウォータージャケットに恒温水を供給することによって，室温（25℃程度）から8℃まで温度条件を，各槽で独立に制御できる。回分式活性汚泥処理の四つの工程，すなわち污水投入，曝気，静置・沈降および処理水放流については24時間タイマーと各装置制御用タイマー（30分～21時間）の組み合わせにより自動化した（写真2-4）。図2-3に装置の概略を示す。本装置は下部の散気管（d）を通して外部の空気が処理槽（c）に導入され，処理槽表面水から排気がなされる。入排気中の対象物質揮散量の測定のため，装置上面に排気（処理槽内を通過あるいは水面から放出される気体）が制御できるように金属製のふた（a：写真2-5）を装置上面にゴムのパッキンで密着した。処理槽内污水（3L）の上方にできる空間（b：容積3L）から経時的に採気で

きるように蓋には採気口（直径2 cm）を設けた。曝気量は通気ポンプの入気口の口径を制御して設定（0～3 L・min⁻¹）、フローメータで微調整した。

c) 家畜ふん堆肥化装置

小型堆肥化装置を試作して試験に用いた（写真2-6、写真2-7）。図2-4に装置の概略を示す。装置は断熱材で覆われた発酵槽（b：直径30cm、深さ73cmの円柱槽：有効容積52L）、発酵槽ふた部分（a：凝縮水受け付き）、ふた部分の断熱材（d）とその他の部分（給気排気系と測定部）で構成される。底面にステンレスメッシュ板（c）を配して底部より任意の設定通気量で強制通気を行なう（図2-4）。送気のためのポンプにより発酵槽底面より供給された空気は槽内を通過し、槽の蓋部分に

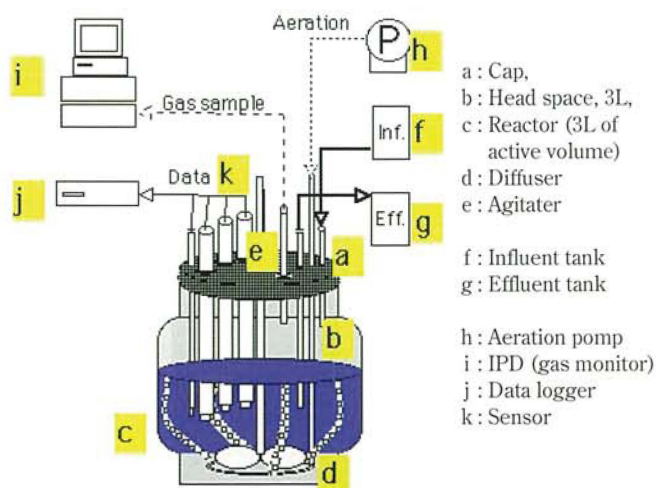


図 2-3 汚水試験装置の構成



写真 2-4 汚水試験装置



写真 2-5 汚水処理試験装置 (ふた部分)

設けた排気口より槽外に排出される。槽への入排気中の対象物質揮散量の測定のため、入気口(槽底面)からのみ給気が行われ、排気口から排気が行われるように気密

を保つ構造とした。槽外に出された排気は除湿された後に捕集、測定された。

処理槽内の発酵槽は断熱材で覆われ、堆肥化で発生する熱の放散をできる限り防ぎ、畜産現場における大規模な堆肥化過程を再現できるよう工夫した。また、排気中に含まれる水分がふた部分で凝縮し、槽内の充填物に戻りにくいよう、凝縮水受けを設けて採取できるようにし、別途評価した。予備試験で好気発酵による品温上昇は70℃程度に達し、4週間程度で完熟した堆肥を製造することができた。

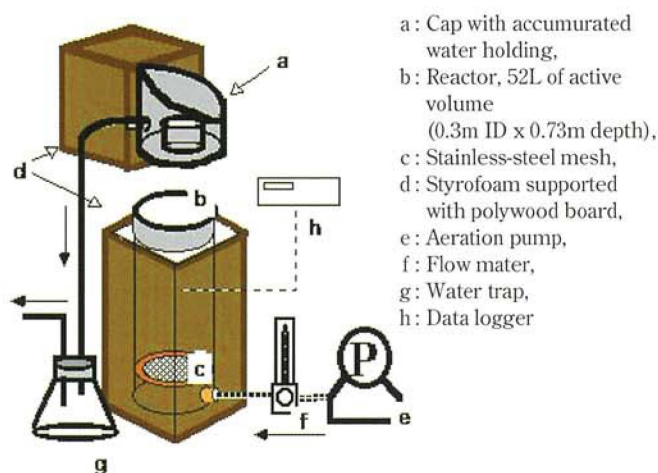


図 2-4 小型堆肥化試験装置

2) 試験設計と手順

a) 豚舎からのアンモニア、メタンおよび亜酸化窒素の発生量測定試験

各室4豚房各10頭ずつ、合計40頭の肥育豚を飼養してアンモニア、メタンおよび亜酸化窒素の発生総量を評価



写真 2-6 小型堆肥化試験装置

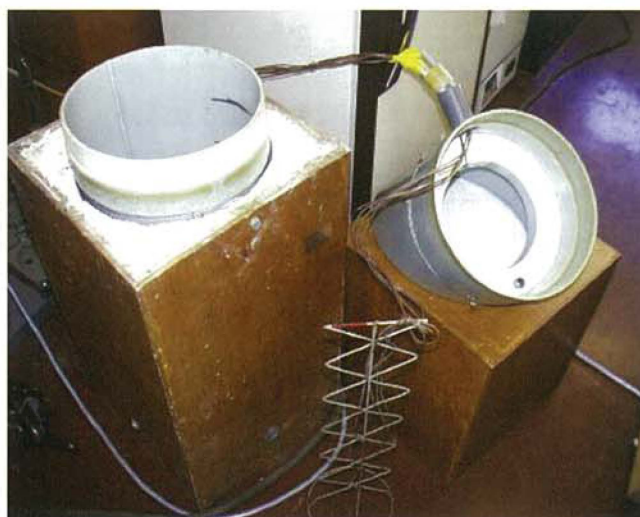


写真 2-7 発酵槽を開けたところ

した。ガスの発生は家畜自体よりも畜舎内に排出されたふん尿を起源とするものの方が大きいと考え、畜舎内貯留槽のふん尿を飼養の全期間貯留したままの区（Stored、貯留区）と毎週搬出する区（Weekly discharged、搬出区）の比較を行い、ふん尿の貯留方法の影響について検討した。

試験はデンマーク農業研究所 Bygholm 試験地の実験畜舎（環境豚舎）で行われた。試験期間は1996年9月から11月の8週間、肥育豚の体重約20kgから80kgまでの標準的飼養全期間を検討対象とした。各試験室の床は豚の飼育エリアとして約37m²を有し、うち11.5m²がすのこ床である部分すのこ豚舎である。各試験室は4つの分房（4.2m×2.2m、各9.2m²、うちすのこ床部分2.8m²）に区分けされ、各区10頭ずつの肥育豚が飼養された（図2-2参照）。飼料、飲水は各房に1つずつ餌箱と飲水器が設置され、自由摂取であった。飼料採食量は毎日残飼を回収して算出、飲水量は毎週測定された。

豚からの排泄物は、各試験室のすのこ床下の貯留槽（約14.8m³）に蓄えられた。貯留されたスラリーは毎週増加量が測定され、サンプルを採取、固形物、全窒素、アンモニア態窒素量が測定された。貯留されたスラリーについて、pH、酸化還元電位についてはスラリー表面（3cm深）およびスラリー内部（45cm深）の位置で約30分毎に測定を行った。また、5cm深で白金センサーによってスラリーの品温についても30分毎に測定された。

試験室は温風機（9kw）と換気回数によって16～17度の室温に保ち、給気側ダクトにfree-running inperer unit（デンマーク工業規格DS6039、1983³¹）を設置し、10分毎に換気量を測定した。畜舎の北側軒下から外気（給気）を、各試験室内の排気ダクトから排気を1時間に3回ずつ採取し、IPD法によって二酸化炭素、アンモニア、メタン及び亜酸化窒素の測定を行った。メタンと亜酸化窒素については、従来法であるガスクロマトグラフによる対象ガス測定を平行して行い、測定データの絶対値の検証を行った。

試験期間中の測定項目およびサンプル採取場所、頻度は表2-1に示す通りである。

b) 汚水浄化処理からのアンモニア、メタンおよび亜酸化窒素の発生量測定試験

汚水処理試験は、通常の畜産農家で行われている回分活性汚泥処理の条件に準じて行われた。1日、24時間を1処理サイクルとしてBOD容積負荷0.5kgm⁻³ day⁻¹

表2-1 畜舎試験の測定項目

Analytical Items (Pig confinement Experiment)					
Period	Materials	Sampling	Frequency	Items	Method
All	Gas	B.G and Exhaust ducts of both pig units	10 min. interval	Temp.	Pt sensors
				Ventilation rate	full size free-running impeller
				Humidity, CO ₂ , NH ₃ , CH ₄ , N ₂ O	Infrared Photoacoustic Detection
	Liquid	Slurry stored in pits (3 or 45cm below surface)	5 min. interval	pH	pH electrode
				ORP	Combination redox electrode
				Temp.	Pt sensors
		Slurry stored in the pits	Weekly	Production	Depth of slurry in pit
				D.M	Drying
				TN	Kj-N+NOx-N
				NH ₄ -N	Bremner
		Pig units	Weekly	Consumed water	Service meter
				TN	Kj-N+NOx-N
	Solid	Feed dispenser	2times	Consumption	weight
	Others	Pig units	Weekly	Pig weight	weight

とし、HRT（水理学的滞留時間）を3日、すなわち処理槽の1/3量にあたる上透水、1Lを毎日処理水として引き抜き、新たな汚水を同量投入して、水温5℃および20℃の条件で汚水処理を行った（図2-5）。

本研究では、一般に行われている通気管理（連続曝気法）および間欠曝気法のもとで、環境負荷ガス発生に水温（5℃および20℃）の及ぼす影響を検討した。間欠曝気法（間欠曝気式回分活性汚泥法、図2-6参照）は、筆者らの研究グループが以前に窒素・りん処理効果向上のために豚尿汚水処理に導入、高い処理効果を報告²⁹⁾した方式であり、環境庁の規制強化に伴い増加しつつある方式である。この方法は曝気時間の合間に嫌気的な時間（通気を止める時間）を随時設け、硝化と脱窒とともに

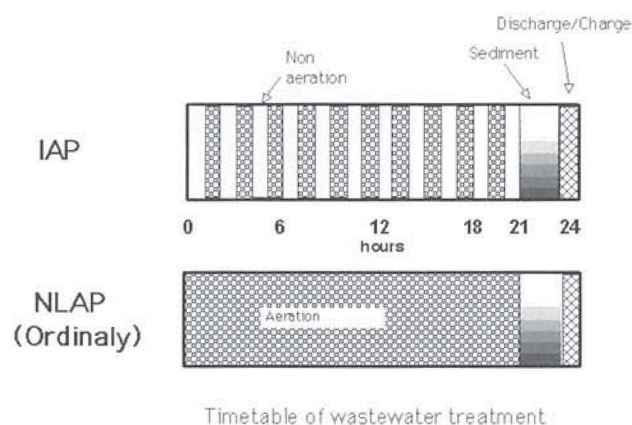


図2-5 浄化試験のタイムスケジュール

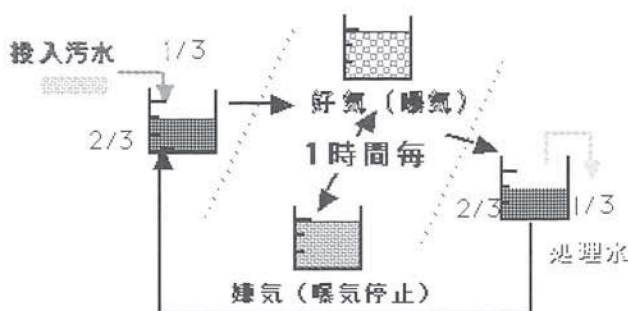


図2-6 間欠曝気式回分活性汚泥法（間欠曝気法）

りんの汚泥濃縮を促し、処理効率を格段に高めたものである。投入汚水は豚のふんに尿を混ぜた汚水を作成したのち、0.5mmのふるいで粗大固形物を除去したものを試験に供した。この汚水（原汚水）を冷蔵保存し、使用時に適宜希釈して試験に用いた。

希釈後の投入汚水の性状はおおむね以下のようなものであった：BOD $1400 \sim 1700 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 、窒素 $185 \sim 215 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ 、全リン $108 \sim 145 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ （詳細は結果の項）。

各処理方式の汚水処理効果が一定になった汚水浄化試験開始約4週間後に、1回の処理サイクル（24時間）についてガス発生を検討した。

それぞれの方式における入気中（外気）、排気中（処理槽上部の空間から採気）の各環境負荷ガス濃度を約5分毎に測定し、該当環境負荷ガス濃度差に、時間当たり通気量を乗じて発生総量を算定した。曝気が行われない時間については、処理槽上部の採気口を密閉して排気を採取し、上部の容積を乗じて当該期間あたり排出量とした。通気を制限する設定の期間を除き、試験期間中は一定流量の通気を行うようにフローメータを用いて設定した。通気量が正確に設定されていることを確認するために、試験期間中には定期的に排気側に湿式積算流量計を設置して確認を行った。

処理の状況を知るため、処理水の分析を週2回行った。これに加え、ガス測定が行われる日は処理水のpH、ORPを30分間隔で連続測定して各環境負荷ガス発生要因を検討した。

試験期間中の測定項目およびサンプル採取場所、頻度については以下の表2-2の通りである。

c) 家畜ふん堆肥化処理からのアンモニア、メタンおよび亜酸化窒素の発生量測定試験

堆肥化処理試験は新鮮豚ふん約19kgに2cm角のダンボール裁断片を混合して含水率が65%程度になるように

調整し、小型堆肥化装置に充填して行った。通気量はフローメータを用いて設定して、堆肥化期間中は一定流量の通気を行うようにした。発酵槽への通気量を実際の堆肥化施設で行われている範囲（ $20 \sim 100 \text{ Lm}^{-3} \text{ min}^{-1}$ ：混合堆積物容積あたりの通気量）で段階的に設定し、揮散物質発生総量に及ぼす影響について検討した。さらに、堆肥化を速やかに進行させるための既往技術である戻し堆肥を評価するため、完熟堆肥を豚ふん重量の10%添加した場合の各種環境負荷ガス発生量の違いを検討した。

堆肥化過程で堆積混合物の性状が不均一にならぬように、充填した堆肥化混合物は週に一回槽外に取り出して切り返しを行った。その際、堆積混合物を採取して分析を行い、堆肥化進行状況の把握を行った。また、堆肥化装置のふた部分にたまった凝縮水についても、切り返し毎に採取して窒素成分の分析を行った。

堆肥化過程における充填物の温度変化は、熱電対を槽内に設置して30分毎にデータロガーに記録した。排気の分析は、各種物質発生量が大きく変化する堆肥化初期および切り返しを行った直後は6時間毎、通常時には24時間毎に排気を採取し、アンモニア、メタンおよび亜酸化窒素の測定を行った。ガス測定時に障害となる湿度を除

表2-2 汚水浄化試験の測定項目

Analytical Items (Wastewater Purification Experiment)

Period	Materials	Sampling	Frequency	Items	Method
All	Gas	Inlet and outlet air	10 min. interval	Temp.	Pt sensors
				flow rate	Flow meter
	Liquid	Influent and effluent	2times/W	pH	pH electrode
				Temp.	Pt sensors
				NH ₄ -N, NO _x -N, PO ₄ -P	Ion Chromatograph
				TN, TP	Colorimetric Method
At the time gas evaluation periods	Gas	Inlet and outlet air	10 min. interval	Temp.	Pt sensors
			7-18 times/day	Flow rate	Flow meter
				NH ₃ , NO	Indicator tube
				CH ₄	FID-GC
	Liquid	Influent and effluent	7-18 times/day	N ₂ O	ECD-GC
				pH	pH electrode
				Temp.	Pt sensors
				NH ₄ -N, NO _x -N, PO ₄ -P	Ion Chromatograph
				TN, TP	Colorimetric Method
	Solid	Activated sludge	Start and End of Experiments	Sludge conc.	Dry and weight
				TN, TP	Colorimetric Method

去するための冷却瓶を通した後、サンプルを採取し、直ちに分析を行った。

通気量が正確に設定されていることを確認するために、試験期間中には定期的に排気側に湿式積算流量計を設置して確認を行った。堆肥化期間の終了時期については、充填物のBOD値を目安に、充填物の品温が切り返し後に40度を越えて上昇しなくなるまで試験を継続して発生気体の分析を続けた。

試験期間中の測定項目およびサンプル採取場所、頻度については以下の表 2-3 に示す通りである。

表 2-3 堆肥化試験の測定項目
Analytical Items (Composting Experiment)

Period	Materials	Sampling	Frequency	Items	Method
All	Gas	Inlet and outlet air	30 min. interval	Temp.	Thermocouples
			Daily	Flow rate	Flow meter
				NH ₃ , NO	Indicator tube
				CH ₄	FID-GC
	Liquid	Accumulated water	Weekly	N ₂ O	ECD-GC
				pH	pH electrode
				NH ₄ -N, NO _x -N	Bremner
				TN	Colorimetric Method
	Solid	Mixture of composting materials	Weekly	Weight	Weight
				D.M	Dry and weight
				pH	pH electrode
				TN	Kj-N+NO _x -N
				NH ₄ -N, NO _x -N	Bremner
			30 min. interval	Temp.	Thermocouples

3) 分析・測定方法

分析・測定法については3つの実験系、すなわち a) 家畜排泄物が貯留される畜舎、これらが運び出されて固液分離された後の、b) 汚水浄化処理と c) 堆肥化処理で、ほぼ共通した手法を用いている。

各系における試料について適用した手法は表 2-4a, 4b, および 4c に示す通りである。

ここでは対象となる試料の形態別に、以下の項目で分析・測定法を述べる。

- a) 通気量、換気量及び温度の測定
- b) 気体試料に関する分析
- c) 液状試料に関する分析
- d) 固形試料に関する分析
- e) その他の分析・測定

a) 通気量、換気量及び温度の測定

a-1) 堆肥化、及び汚水浄化処理装置の通気量測定

堆肥化試験装置（有効容積55L）及び汚水浄化試験装置（有効容積10L）の試験における通気量の測定は、それぞれ $5\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$, $2\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$ フルスケールの浮き玉式フローメータを用いておこなった。フローメータには数%の誤差があるため、試験での使用前に湿式積算流量計（品川精機）によって校正して用いた。

a-2) 実験豚舎の換気量測定

実験畜舎では、換気量は温度調整のために絶えず変化するため、給気側ダクトに free-running inperer unit（デンマーク工業規格DS6039⁴⁰⁾）を設置し、10分毎に換気量を測定した。これは内外の気圧差で自由回転する羽の回

表 2-4a 分析手法一覧（畜舎試験）
Analytical Items (Pig confinement Experiment)

Period	Materials	Sampling	Frequency	Items	Method	References
All	Gas	B.G and Exhaust ducts of both pig units	10 min. interval	Temp.	Pt sensors	APHA ¹⁾
				Ventilation rate	full size free-running impeller	DS 6039 Pedersen & Strom
				Humidity, CO ₂ , NH ₃ , CH ₄ , N ₂ O	Infrared Photoacoustic Detection	Rom,H.B. ⁴⁰⁾
	Liquid	Slurry stored in pits (3 or 45 cm below surface)	5 min. interval	pH	pH electrode	APHA ¹⁾
				ORP	Combination redox electrode	
				Temp.	Pt sensors	
		Slurry stored in the pits	Weekly	Production	Depth of slurry in pit	Rom,H.B. ⁴⁰⁾
				D.M	Drying	APHA ¹⁾
				TN	Kj-N+Nox-N	
				NH ₄ -N	Bremner	
		Pig units	Weekly	Consumed water	Service meter	Rom,H.B. ⁴⁰⁾
	Solid	Feed dispenser	2times	TN	Kj-N+NO _x -N	APHA ¹⁾
			Weekly	Consumption	weight	Rom,H.B. ⁴⁰⁾
	Others	Pig units	Weekly	Pig weight	weight	Rom,H.B. ⁴⁰⁾

表 2-4b 分析手法一覧 (污水浄化処理試験)

Analytical Items (Wastewater Purification Experiment)

Period	Materials	Sampling	Frequency	Items	Method	References
All	Gas	Inlet and outlet air	10 min. interval	Temp.	Pt sensors	APHA ¹⁾
				flow late	Flow meter	Sewage analysis manual ⁴⁸⁾
	Liquid	Influent and effluent	2times/W	pH	pH electrode	APHA ¹⁾
				Temp.	Pt sensors	
				NH4-N, NOx-N, PO4-P	Ion Chromatograph	
				TN, TP	Colorimetric Method	Sewage analysis manual ⁴⁸⁾
	Solid	Activated sludge	Weekly	Sludge conc.	Dry and weight	
				TN, TP	Colorimetric Method	
At the time gas evaluation periods	Gas	Inlet and outlet air	10 min. interval	Temp.	Pt sensors	APHA ¹⁾
				Flow late	Flow meter	Sewage analysis manual ⁴⁸⁾
			7-18 times/day	NH3, NO	Indicator tube	Maloder analysis manual ¹⁷⁾
				CH4	FID-GC	Soil Environment Analysis Method ²⁶⁾
				N2O	ECD-GC	
	Liquid	Influent and effluent	7-18 times/day	pH	pH electrode	APHA ¹⁾
				Temp.	Pt sensors	
				NH4-N, NOx-N, PO4-P	Ion Chromatograph	
				TN, TP	Colorimetric Method	Sewage analysis manual ⁴⁸⁾
	Solid	Activated sludge	Start and End of Experiments	Sludge conc.	Dry and weight	
				TN, TP	Colorimetric Method	1996

表 2-4c 分析手法一覧 (堆肥化処理試験)

Analytical Items (Composting Experiment)

Period	Materials	Sampling	Frequency	Items	Method	References
All	Gas	Inlet and outlet air	30 min. interval	Temp.	Thermocouples	Soil Environment Analysis Method ²⁶⁾
			Daily	Flow late	Flow meter	Sewage analysis manual ⁴⁸⁾
				NH3, NO	Indicator tube	Maloder analysis manual ¹⁷⁾
				CH4	FID-GC	Soil Environment Analysis Method ²⁶⁾
				N2O	ECD-GC	
	Liquid	Accumulated water	Weekly	pH	pH electrode	Sewage analysis manual ⁴⁸⁾
				NH4-N, NOx-N,	Bremner	
				TN	Colorimetric Method	
	Solid	Mixture of composting materials	Weekly	Weight	Weight	Soil Environment Analysis Method ²⁶⁾
				D.M	Dry and weight	
				pH	pH electrode	
				TN	Kj-N+NOx-N	
				NH4-N, NOx-N,	Bremner	
			30 min. interval	Temp.	Thermocouples	

転速度から換気量をもとめるものである ²⁶⁾。

a-3) 温度の測定

温度は、熱電対（銅-コンスタンタン）で測定し、設定された時間間隔でデータレコーダー（サーモダック、江藤電機）に記録した ²⁶⁾。アンモニアによる腐食防止のため、堆肥化装置に設置した測温部位については応答速

度が著しく長くない範囲（30秒以内）でプラスチック素材で保護をして用いた。豚舎の貯留スラリーについては、白金センサー（Pt100-180-5 M3M）を用いた。

b) 気体試料に関する測定

各試験装置及び実験豚舎からのアンモニア、メタン及び亜酸化窒素の発生量を算出するために、各実験系に導

入される空気、排出される空気を一定時間ごとに測定した。また、排気が実験系に影響していないことを確認するためにバックグラウンドとなる実験室内外の空気についても測定した。各物質濃度の分析法を次に述べる。

b-1) アンモニア

アンモニアについては検知管法とFTIR (Fourier Transform Infra Red) に基づく赤外光音響検出器 (IPD) による連続分析で測定した。また、アンモニア総排出量を求めるために湿式捕集-蒸留滴定法を併用した。

b-1-1) 赤外光音響検出器による測定

赤外光音響測定器 (Infrared Photoacoustic Detector, Multi-gas Monitor Type 1302, Multipoint Sampler and Doser Type 1303, INNOVA, DK 以下 IPD) を用いてアンモニアの連続測定を行った。この機器は原理をFTIRに基づく。検出器は吸光光度法ではなく、特定波長の吸収による測定対象物質の分子振動増加に起因する圧力変化を小型マイクロフォンで捕らえる。

アンモニアに関して測定範囲は0.2ppmから100ppm程度の広いダイナミックレンジを有し、最短0.5秒程度間隔での連続測定が可能である。測定の対象の気体試料を定時毎に内部ポンプで自動的にフラッシングの後にサンプリングし、検出器に導入する。テフロンチューブ (内径2mm) で25m離れた場所からも十分本体にサンプリングが可能である。測定ガス成分の相互干渉補正のためのフィルターの使用により、感度の向上と多成分 (アンモニア、メタン、亜酸化窒素、二酸化炭素、湿度等) の同時解析が可能である⁴⁰⁾。豚舎内外のアンモニア濃度の測定に用いた。

b-1-2) 検知管法

アンモニア測定用検知管 (Gastec) はアンモニアが硫酸、あるいはリン酸と中和反応を起こして指示薬 (桃色から黄色へ) 変色させることを利用したものであり、一定速度で一定量の測定対象試料ガスを検知管に導いて濃度測定を行うものである。

本法は簡易法ではあるが、特に家畜ふん尿を対象にした処理における測定法としては信頼できる測定値を与える¹⁷⁾。後日、本法と湿式捕集-蒸留滴定法を併用し総排出量のデータを算出したが、誤差は最大10%程度にとどまった。また、アンモニアの濃度が低いことを確認するため、試験装置や施設周辺の測定も本法で行った。

b-1-3) 湿式捕集-蒸留滴定法

堆肥化試験装置の排気を200mL程度硫酸 (2規定~6規定硫酸) 溶液を入れた吸収瓶に導き、硫酸にアンモニアを捕集し、その一部を蒸留、中和滴定によりアンモニ

ア量を算出する⁴⁰⁾。

b-2) メタン

メタンの測定にはガスクロマトグラフ法 (GC法) を、主に用いて分析を行った。連続測定が必要な豚舎内については赤外光音響測定法 (IPD法) によって測定した。

b-2-1) FID-GCによる分析 (GC法)

メタンは、対象ガスをテドラーバックに採取し、ガスクロマトグラフで分析した。メタン分析にはFID-GC (水素炎イオン化検出器付きガスクロ) を用いた。

メタン分析条件

FID 付きガスクロマトグラフ (日本電子JEOL-K53)

カラム : ステンレスカラム (ϕ 2.8mm×1m)

充填材 : Unibeads C (60/80 mesh)

ガ ス : He 3 kg cm⁻²

H₂ 0.6 kg cm⁻²

Air 1.3 kg cm⁻²

温度条件: InjectionTemp. 180°C

Column oven temp. 110°C

Detector temp. 180°C

b-2-2) 赤外光音響測定法による分析

赤外光音響測定器を用いてメタンの連続測定を行った。機器の詳細は「b-1-1) 赤外光音響検出器による測定」に示した。本機はメタンの測定範囲として0.4ppmから200ppm程度の広いダイナミックレンジを有し、最短0.5秒程度間隔での連続測定が可能である⁴⁰⁾。メタン測定に関しては湿度と二酸化炭素の影響を受けやすく、畜舎内での測定では、GC法に比べて常に数%の高い値を示した。このため、IPD法の測定をGC法の測定値で補正した。補正のための検量線の相関係数 (r) は0.85~0.93であった³²⁾。

b-3) 亜酸化窒素

亜酸化窒素の測定にはガスクロマトグラフ法を、主に用いて分析を行った。連続測定が必要な豚舎内については赤外光音響測定法によって測定した。

b-3-1) ECD-GCによる分析

亜酸化窒素は、対象ガスをテドラーバックに採取し、ガスクロマトグラフで分析した。分析にはECD-GC (電子捕獲検出器付きガスクロ) を用いた。

亜酸化窒素分析条件

ECD 付きガスクロマトグラフ (Shimadzu GC-14A)

カラム : ガラスカラム (ϕ 3.2mm×1.1m)

充填材 : Unibeads C (60/80 mesh)

ガ ス : N₂ 2.2 kg cm⁻²

温度条件: InjectionTemp. 210°C

Column oven temp. 200°C

Detector temp. 344°C

b-3-2) 赤外光音響測定法による分析

赤外光音響測定器を用いて亜酸化窒素の連続測定を行った。機器の詳細は「b-1-1) 赤外光音響検出器による測定」に示した。本機は亜酸化窒素の測定範囲として0.03ppmから50ppm程度の広いダイナミックレンジを有し、最短0.5秒程度間隔での連続測定が可能である⁴⁰⁾。亜酸化窒素測定に関しては湿度と二酸化炭素の影響を受けやすく、畜舎内での測定では、GC法に比べて常に数%の高い値を示した。このため、IPD法の測定をGC法の測定値で補正した。補正のための検量線の相関係数(r)は0.81~0.97であった³²⁾。

b-4) その他の気体の分析

豚舎試験においては二酸化炭素を赤外光音響測定器法で連続測定した。機器の詳細は「b-1-1) 赤外光音響検出器による測定」に示した。二酸化炭素に関して測定範囲は1.5ppmから5000ppm程度の広いダイナミックレンジを有し、最短0.5秒程度間隔での連続測定が可能である⁴⁰⁾。

c) 液状試料に関する分析

各系の試験における液状試料の分析について述べる。基本的には液状の試料については下水道試験法(JIS)に従って分析を、固形分の多いスラリー状の試料については土壤環境分析法(土壤肥料学会監修, 博友社)に従って分析を行った。

c-1) pH(水素イオン濃度), Eh(酸化還元電位), DO(溶存酸素)

pH, Eh及びDOについては、それぞれガラス複合電極(Ingold HA405-DPA-SC-S8/120, HA405-DPA-SC-S8/425), ORP測定用の白金電極(Ingold PT4805-DPA-SC-S8/120)及び溶存酸素計(ガルバニ電池型)によって測定を行った。状態量であるため、基本的には試験装置内に各電極を設置し、週に1度の頻度で標準試料による校正を行った。

c-2) TS(全固形物, 乾物重), VS(強熱減量), SS(懸濁物)

TSとVSの測定では、100mL容量の磁性皿に50mLの試料をとり、105°Cで乾固の後の質量からTSを、600°Cで燃焼後質量からVSを算出する。SSはガラス繊維濾紙法で測定した。ガラス繊維濾紙法は、ガラス繊維ろ紙(孔径1μm)を用いて試料の一定量をろ過し、蒸発乾固、乾燥してガラス繊維ろ紙上の残留物の重量をはかる方法である⁴¹⁾。

c-3) BOD(生物化学的酸素要求量)

BODは污水处理の状況を把握するための最も重要な項目の一つである。

採取した試料は適宜希釈された後、クーロメータ(大倉理研)によってBODの測定を行った。本機は試料を二酸化炭素吸収剤を挿入した気密瓶内で培養し、不足する酸素を機械的に随時供給するシステムになっている。供給された酸素量を電氣的に記録する事ができるため、従来の方法よりも少ない繰り返し数の実行でも確実にデータが取れる⁴²⁾。

c-4) 全窒素, 全リン

液状試料中の全窒素, 全リンの分析は、窒素とリンを含有する有機物を分解し、それぞれアンモニア態窒素(NH_4^+)及び正リン酸(PO_4^{3-})にしてから、比色定量を行った。スラリーや投入汚水のような有機物や浮遊物質に富む試料の場合はケルダール分解(6N硫酸)の後、窒素についてはBremner 蒸留-中和滴定法でKj-N窒素を計算し、後述の硝酸・亜硝酸態窒素を加算して算出した。りんについては分解液を適宜希釈した後、モリブデン青(アスコルビン酸)吸光光度法によって発色の後、分光光度計(710nm)によって定量した²⁶⁾。

浄化処理水のように有機物が少ない試料については、適当な窒素濃度に調整した試料を100mL容量分解瓶にとり、これに水酸化ナトリウム-ペルオキソ二硫酸カリウム溶液を加え、直ちに密栓して混合、分解瓶を高圧蒸気滅菌器に入れて加熱し、120°Cで30分間加熱分解を行った。放冷後、窒素については分解液に塩酸(1+16)を加えてpHを2~3に調整し、検液の一部を吸収セルに移し、波長220nmにおける吸光度を測定した。りんの定量は、モリブデン青(アスコルビン酸)吸光光度法によって710nmで定量した⁴³⁾。

c-5) NH_4^+ (アンモニア態窒素), NO_x^- ($\text{NO}_2^- + \text{NO}_3^-$, 硝酸・亜硝酸態窒素)

試料中のアンモニア態窒素については、Bremner法によって測定した²⁶⁾。試料数mLに酸化マグネシウムを加えて水蒸気蒸留を行い、指示薬入りのホウ酸溶液(2%)にアンモニア態窒素を吸収させる。この捕集液を1/200硫酸によって中和滴定してアンモニア含有量を算出した。

この分析操作後、さらにデバルタ合金を加えて再度水蒸気蒸留を行うことで硝酸・亜硝酸態窒素をアンモニアまで還元し、別の指示薬入りのホウ酸溶液(2%)にアンモニア態窒素としてを吸収させて NO_x^- ($\text{NO}_2^- + \text{NO}_3^-$)含有量を算出した。

c-6) NO_2^- , NO_3^- , PO_4^{2-} (陰イオン)

試料溶媒中でイオン化した陰イオン成分については、試料を $0.45\mu\text{m}$ のフィルターで濾過して懸濁物質を除去した後、イオンクロマトグラフ (サブレッサ方式, 横川 IC200) で分析を行った。

陰イオン分析条件

電気伝導度検出器付きイオンクロマトグラフ
(横川 IC200)

カラム : SAX1-251
プレカラム : PAX1-051
溶離液 : $4\text{mM Na}_2\text{CO}_3$
 $4\text{mM Na}_2\text{HCO}_3$
除去液 : $15\text{mM H}_2\text{SO}_4$
温度条件 : 25°C

d) 固形試料に関する分析

各系の試験における固形試料の分析について述べる。基本的には固形分の多いスラリー状の試料と同様に、土壤環境分析法 (土壤肥科学会監修, 博友社) に従って分析を行った。

d-1) TS, VS

TSとVSは、 100mL 容量の磁性皿に数グラムの試料をとり、 105°C で乾固の後 (約4時間) の質量からTSを、 600°C で燃焼後質量からVSを算出した²⁶⁾。

d-2) 汚泥濃度 (MLSS)

污水浄化処理試験で、活性汚泥の状況を把握・汚泥濃度管理をするために測定した。沈殿過程に入る直前の曝気状態で 50mL の汚泥-処理水混合液を採取し、TSの測定と同様の操作を行う。この状態では浄化が終了しており、かつ、汚泥が完全に槽内に混合されている。 100mL 容量の磁性皿に試料をとり、 105°C で乾固の後 (約4時間) の質量からMLSSを算出する²⁶⁾。

d-3) pH, NH_4^+ , (NO_x^-)

試料乾物質量 $2\sim 3\text{g}$ 程度に 40mL 程度 (約20倍量) の 2N KCl を加え、30分程度浸透抽出を行い、遠心操作の後の抽出液上澄みについて分析した²⁶⁾。pHについては、「c) 液状試料に関する分析 c-1) pH (水素イオン濃度), Eh (酸化還元電位), DO (溶存酸素)」に示した。 NH_4^+ , (NO_x^-) については「c) 液状試料に関する分析 c-5) NH_4^+ , (NO_x^-)」に示した。

d-4) 全窒素, 全リン

固形試料中の全窒素, 全リンの分析は、窒素とリンを含有する有機物を強酸分解し、それぞれアンモニア態窒素 (NH_4^+) 及び正リン酸 (PO_4^{3-}) にしてから、比色定

量を行った。

ふん尿固形物は、スラリーと同様に有機物に富む試料であるため、ケルダール分解 (6N硫酸) の後、窒素についてはBremner 蒸留-中和滴定法でKj-N窒素を計算し、後述の硝酸・亜硝酸態窒素を加算して算出した。りんについては分解液を適宜希釈した後、モリブデン青 (アスコルビン酸) 吸光光度法によって発色した後、分光光度計 (710nm) によって定量した²⁶⁾。

e) その他の分析・測定

上記で述べなかった豚舎試験における飼料と体重測定については、デンマーク農学研究所の常法の基づいて行われた。飼料の摂取量については、毎日の飼槽の残飼量を給与量から差し引いて求めた。体重測定は全頭について週に1回の頻度で、畜舎内に体重計を持ち込んで測定を行った⁴⁰⁾。

第3章 豚舎からの環境負荷ガスの発生

1) 環境要因の比較とデータの取り扱い

a) 試験室の温度環境およびスラリーの性状変化

8週間の試験期間中の両試験室、搬出区と貯留区の環境条件および飼養環境に関わる要件を表3-1にまとめ、その変動について図3-1に示した。

今回の飼養試験では供試豚の成長は順調であり、 30kg で肥育を開始した両試験区の40頭が平均 $85\sim 87\text{kg}$ に増体した。試験期間中の飼料摂取は1頭あたり約 120kg 、水摂取量は約 470L 、また排出されたふん尿混合物量は約 300L と算定され、両区に差は認められなかった。

湿度、室温や約13回の換気回数 (約 $2000\text{m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$) にも両区には大きな差はなかった。両試験室には試験開始時に温風器を設置して加温を行っていたが、5週目以降は豚が十分成長したため使用を中止した。室内温度は両区で日間平均 17°C 前後でほぼ試験全期間変化がなかった (図3-1上)。

貯留物の温度は室温とほぼ同じ温度で推移し、両処理区間の差異はなかった (図3-1中)。貯留物のpHの値も両試験区間で大きな差を認めなかった (図3-1中)。しかし、貯留区のpHが一貫してほぼ中性 (7.0) 程度を示したのに対し、搬出区のpHが毎週の搬出後一時的にアルカリ側に傾く事が多く、変化の幅が大きかった。貯留区に設けた 45cm 深のpHとORP測定点の結果は、 3cm 深の結果と類似した傾向で大きな違いはなかった。貯留物表層に形成された固形物層 (スカム) は、スラリーの測定ができるようになった飼養試験開始後1週間で厚み3

表 3-1 各試験室の試験期間中の飼養環境 (56日間)

Experimental conditions			
Items	Unit	Weekly discharged treatment	Stored treatment
Livestock weight at beginning	kg (ave.)	32.4	31.9
Livestock weight at end	kg (ave.)	85.5	87.1
Feed consumption	kg / pig	119.8	124.5
Water consumption	m3 / pig	0.470	0.457
Slurry production	m3 / pig	0.309	0.289
Unit temperature	oC (ave.)	16.4	16.6
Unit humidity	% (ave.)	62.9	60.6
Ventilation	m3 / hour (ave.)	2080	2138
Slurry temperature	oC (ave.)	17	16.5
Eh of Slurry (3 cm depth)	mV (range)	-483~185	-521~14
pH of Slurry (3 cm depth)	— (range)	6.43~9.12	6.78~8.58
D.M of Slurry	% (ave.)	5.88	4.95
TN of Slurry	% of D.M (ave.)	10.17	11.02
NH4-N of Slurry	% of D.M (ave.)	6.80	7.46

(Sep - Nov. 1996, 8 weeks)

～5 cmに達し、貯留物は表面が乾燥しただけで酸化的な分解がほとんど進まない状態であったと考えられる。

すのこ床下に貯留されたふん尿混合物については、毎週10～15cm厚さ程度の割合で貯留物が増加し、堆積物を持ち出さない貯留区では試験期間中に堆積物は1 mの深さに達した。貯留物は表面3 cmの表層の測定点で期間中一貫して還元的状態 (ORP -200～-400mV) であり、貯留区の方が搬出区よりも若干高めの値で推移したが大差はなかった。搬出区では、毎週のスラリー搬出の際にORPの瞬間的な上昇が見られるが、速やかに還元的状態に復帰していた (図 3-1 下)。

貯留物の採取に際しては表層の固形物を除いた液状部を採取、別途採取した表層と容器内で混合して分析サンプルとした。

b) 貯留期間がふん尿の性状に及ぼす影響

飼養環境とともにアンモニアの試験室内での排出量低減を期待して、貯留物を毎週搬出して貯留区と比較した。前述したように、室内温度、湿度には大きな差がなく、また、貯留物のpH、ORPなどの指標の平均値にも大き

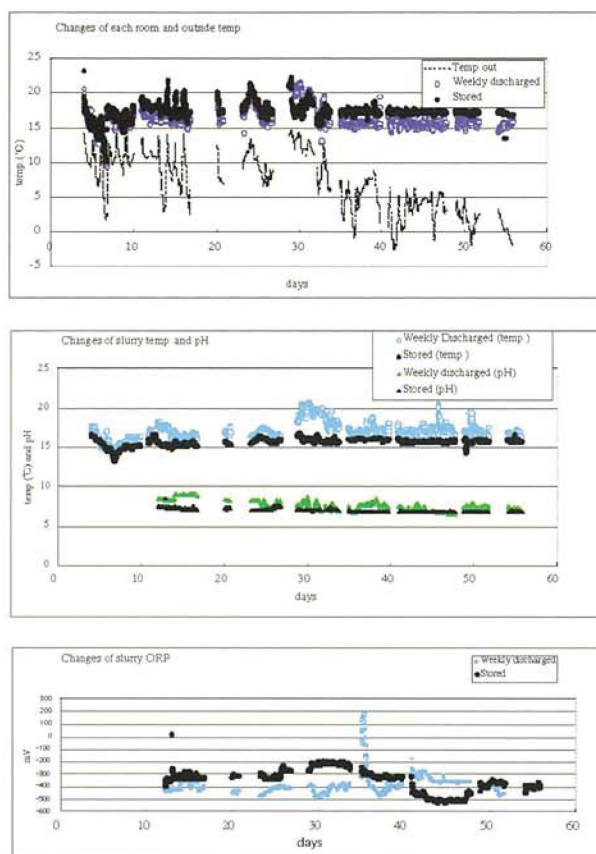


図 3-1 試験室の温度環境、スラリーの性状変化
(試験室内外温度 [上]、スラリー品温とpH [中]
およびORPの変動 [下])

な差異は認められなかった。しかし貯留区で貯留スラリーの乾物含有率が低く、窒素、アンモニアの乾物あたり含有率が高い傾向が認められた (表 3-1)。貯留区においては、スラリー貯留中に有機物分解が進んだ結果、固形分の減少がおこったと思われる。また貯留物に厚く形成した表層の固形物に阻まれて、有機物の分解で生じたアンモニアが大気中に揮散しにくい状況にあったためと思われる。また、貯留区のpHには貯留期間の進行とともに継続したpHの低下傾向もみられた。これは貯留物中の有機物分解産物として酸性物質 (脂肪酸類) の生成によると見られる (図 3-1)。

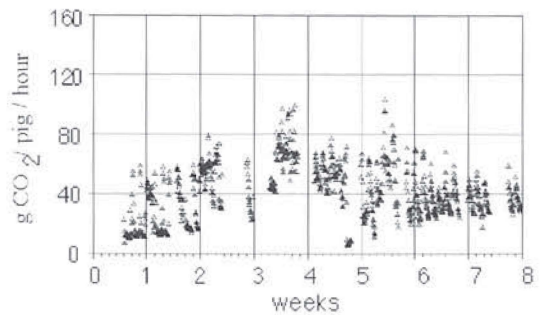
c) 発生した環境負荷ガスの算出と評価

物質揮散量の算定に必要なデータ、すなわち吸気と排気の各物質濃度と換気量については、できうる限り連続的にデータを採取した。1週あたり100時間以上 (168時間中) で全期間8週間のうち70%の時間の測定値を得ることができた。

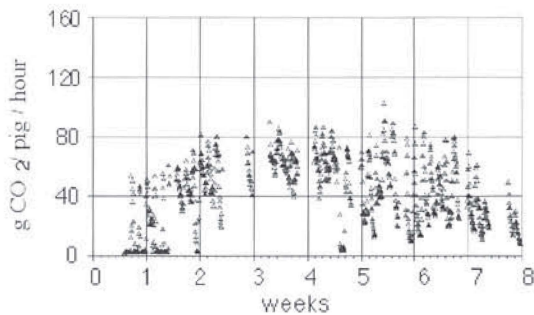
データは時刻 (0時～24時) や時期 (1～8週目) による偏りが起きないように、日中、夜半に限らず収集した。

後述の時刻毎のデータ集計の結果では、収集データの収集時刻と収集された時期（飼育経過週日）との間の相関

値は $r^2 = 0.003$ と極めて低く、互いに独立していると考えられた。

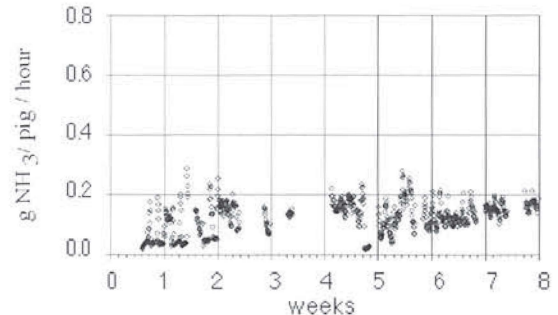


CO₂ emission from the pig confinement building where slurry was carried out weekly (Weekly discharged)

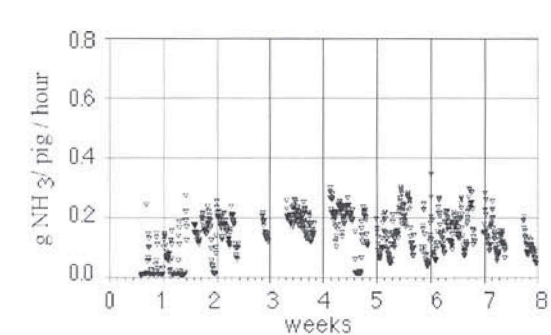


CO₂ emission from the pig confinement where slurry was left in the pit until the end of the experiment (Stored)

図 3-2 各試験室の二酸化炭素濃度の変動
(Weekly discharged：搬出区 [上] と Stored：貯留区 [下])

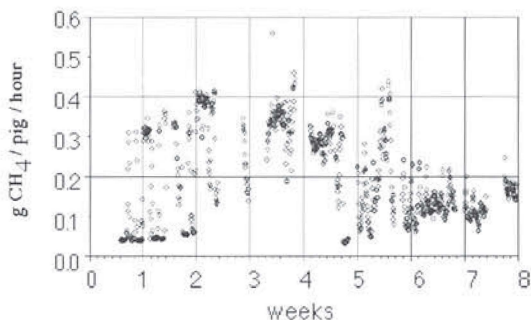


NH₃ emission from the pig confinement building where slurry was carried out weekly (Weekly discharged)

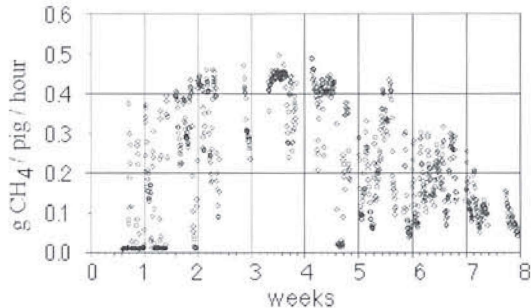


NH₃ emission from the pig confinement where slurry was left in the pit until the end of the experiment (Stored)

図 3-3 各試験室のアンモニアの変動
(Weekly discharged：搬出区 [上] と Stored：貯留区 [下])

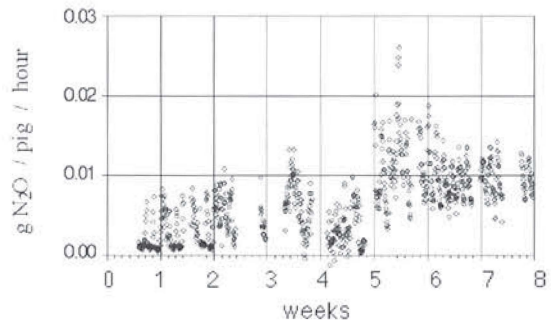


CH₄ emission from the pig confinement building from where slurry was carried out weekly (Weekly discharged)

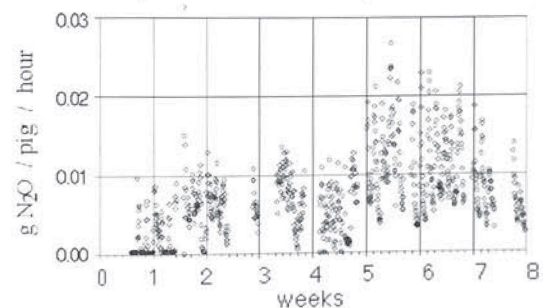


CH₄ emission from the pig confinement where slurry was left in the pit until the end of the experiment (Stored)

図 3-4 各試験室のメタンの変動
(Weekly discharged：搬出区 [上] と Stored：貯留区 [下])



N₂O emission from the pig confinement building from where slurry was carried out weekly (Weekly discharged)



N₂O emission from the pig confinement where slurry was left in the pit until the end of the experiment (Stored)

図 3-5 各試験室の亜酸化窒素濃度の変動
(Weekly discharged：搬出区 [上] と Stored：貯留区 [下])

吸気中と排気中のアンモニア (NH_3)、メタン (CH_4) および亜酸化窒素 (N_2O) の濃度測定値 ($\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$) と各試験区の換気量 ($\text{m}^3 \cdot \text{hour}^{-1}$) の5分間の平均測定値から、各気体の5分間の放出量を次式から算出した。

放出量 E ($\text{mg}/5\text{min}$) =

$$(\text{排気中の濃度} (\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}) - \text{吸気中の濃度} (\text{mg} \cdot \text{m}^{-3})) \\ \times 5/60 \times \text{換気量} (\text{m}^3 \cdot \text{hour}^{-1})$$

この値を豚1頭あたり1時間あたりに換算 ($\text{g} \cdot \text{pig}^{-1} \cdot \text{hour}^{-1}$) し、両試験区的全データを時系列的に並べたのが図3-2 (二酸化炭素)、図3-3 (アンモニア)、図3-4 (メタン) および図3-5 (亜酸化窒素) である。試験期間中の両試験室、搬出区と貯留区の間に、どの物質の動態についても、大きな差異は認められなかった。しかし、飼養経過時間の進行とともに発生量が増減していること (期間変動)、また数時間の発生量の大きな増減 (日間変化) がどの物質についてもあることが推察された。その様子は個々の物質で異なる。

二酸化炭素 (図3-2) とメタン (図3-4) では、短時間の変動幅を考慮しても、飼育期間のある時期 (3~4週目) にピークが認められる。二酸化炭素発生量は数十 $\text{gCO}_2 \cdot \text{pig}^{-1} \cdot \text{hour}^{-1}$ の幅で日間変動しながら飼養開始から上昇し、3~4週目で日間平均値で $60\text{gCO}_2 \cdot \text{pig}^{-1} \cdot \text{hour}^{-1}$ 程度に達し、その後若干減少していた (図3-2)。

メタンについても発生量は数百 $\text{mgCH}_4 \cdot \text{pig}^{-1} \cdot \text{hour}^{-1}$ の幅で日間変動しながら飼養開始から上昇し、3~4週目で日間平均値で $0.4\text{gCH}_4 \cdot \text{pig}^{-1} \cdot \text{hour}^{-1}$ 程度に達し、その後日間変動の幅が小さくなり急速に減少していた (図3-4)。

アンモニアについては飼育期間の経過とともに発生量が若干増加し、3~4週目からは一定値に達して日間変動していた (図3-3)。亜酸化窒素は発生量が5週目に急増し、その日間変動幅も大きくなっていた (図3-5)。

この放出量 (E) から算出した1時間当たり放出量 ($\text{mgNH}_3 \cdot \text{hour}^{-1}$) を各時刻毎に飼養開始から1週間単位の平均値として算出し、各週各時刻の平均放出量を算出した。ここから算定された各週の平均的な24時間放出量を比較して飼育期間における変化 (「2」環境負荷ガス発生量の期間変動) について解析するとともに、時刻毎の平均値を比較して周期的変動 (「3」環境負荷ガス発生量の日間変動) についても次節で検討した。

両試験区のあいだの差異は、このような期間変動と日間変動に比べ小さく、また、両者の変動の様子も極めて似通ったものであった。

2) 環境負荷ガス発生量の期間変動

飼養期間中の生育ステージによる発生量の変化を検討するため、各環境負荷物質の1日肥育豚1頭あたりの放出量 ($\text{g} \cdot \text{pig}^{-1} \cdot \text{day}^{-1}$) の平均値を1週間毎に算出して検討した。図3-6 (二酸化炭素)、図3-7 (アンモニア)、図3-8 (メタン) および図3-9 (亜酸化窒素) にこれを示した。

a) 二酸化炭素とアンモニアの揮散量変化

図3-6に二酸化炭素の発生量の変化を示した。二酸化炭素発生量の変化パターンは両試験区間で明確な差はない。肥育開始後4週目において発生量が最大となり、その後ゆっくりと減少している。畜舎内における二酸化炭素の発生の主要因は豚の呼気に起因する。肥育豚の活動量は、観察によれば肥育後期になると落ちてきており、これが期間変動の主原因の一つと思われる。また、通常の代謝試験で見られる畜体の体重増加に伴う二酸化炭素発生量増加が見られないのは、本試験にはスラリーからの二酸化炭素発生が影響している可能性もある。この試験と同様な肥育豚からの二酸化炭素発生量は、生体重30kgにおいて $1.0\text{kgCO}_2 \cdot \text{pig}^{-1} \cdot \text{day}^{-1}$ 、80kgにおいて $2.0\text{kgCO}_2 \cdot \text{pig}^{-1} \cdot \text{day}^{-1}$ 、と報告されている⁵⁰⁾。今回の発生量は $0.4\text{kgCO}_2 \cdot \text{pig}^{-1} \cdot \text{day}^{-1}$ から $1.6\text{kgCO}_2 \cdot \text{pig}^{-1} \cdot \text{day}^{-1}$ の範囲であり、この値に近いものであった。図3-6に示すように、貯留区からの二酸化炭素発生量は、搬出区に比べて若干高く推移した。この差異は家畜ふん尿からの二酸化炭素発生とも考えられるが、この試験で見る限り、期間変動に比べて小さいものであった。

図3-7にアンモニアの発生量の変化を示した。アンモニアの放出量は搬出区、貯留区ともに1週目 ($1.0\text{gNH}_3 \cdot \text{pig}^{-1} \cdot \text{day}^{-1}$) から3週目まで増加して $3.7\text{gNH}_3 \cdot \text{pig}^{-1} \cdot \text{day}^{-1}$ から $4.3\text{gNH}_3 \cdot \text{pig}^{-1} \cdot \text{day}^{-1}$ に達し、それ以降は一定値で推移した。アンモニアの畜舎内での発生源は貯留されているスラリーである。RomTMによれば、貯留槽のスラリーからのアンモニア揮散は、貯留されるスラリーの表層数センチのアンモニア量に規定されている。つまり、スラリーの容積ではなく、主に表面積に規定されている。アンモニア揮散は、今回の試験で貯留されるスラリーの増加とともに3週目まで増加したが、揮散量が以後一定値で推移したのはこのためと考えられる (図3-7)。

アンモニアは貯留区に比べて搬出区の放出量は有意に低かった ($p < 5\%$)。

しかし、この差異は小さく、毎週スラリーを搬出する

事が畜舎内でのアンモニア揮散抑制に効果的とはいえない。本試験のアンモニア発生量の値はMannebeck and Oldenburg²¹⁾ やPhillips et al³⁰⁾ とほぼ同じ値であった。

しかし、Rom⁴⁰⁾ は、肥育初期に $3\sim 5\text{gNH}_3 \cdot \text{pig}^{-1} \cdot \text{day}^{-1}$ 、肥育後期には $13\sim 15\text{gNH}_3 \cdot \text{pig}^{-1} \cdot \text{day}^{-1}$ の発生量を報告している。Hartung and Phillips¹¹⁾ のレビューによれば、豚舎からのアンモニア発生量は $17.5\sim 39.4\text{kgNH}_3 \cdot \text{LU}^{-1} \cdot \text{year}^{-1}$ (LU = Livestock Unit, i.e. 500kg live weight) とされている。これらの試験におけるスラリーのpHは7.3~7.6と報告されている^{11,40)}。この単位系に、今回の結果を換算すると $11.0\sim 11.8\text{kgNH}_3 \cdot \text{LU}^{-1} \cdot \text{year}^{-1}$ となる。本試験の貯留区の貯留スラリーは比較的低めのpH条件 (6.8~7.0) で推移していたことに加え、温調した施設内であっても冬季における試験であったこと、および厚く形成したスカムによってアンモニア揮散が抑制され、発生量が低かったのではないかと考

察される。さらに夏期の試験を行い、季節変動要因について検討する必要がある。

b) メタンの揮散量変化

図3-8にメタンの発生量の変化を示した。メタンの放出量はアンモニア同様に両試験区とも $2.0\text{gCH}_4 \cdot \text{pig}^{-1} \cdot \text{day}^{-1}$ から $8.0\text{gCH}_4 \cdot \text{pig}^{-1} \cdot \text{day}^{-1}$ と3週目まで増加したが4週目以降は減少に転じた。メタンの発生は、二酸化炭素同様に豚自身からも寄与がある。排ふんに伴うガスの放出 (いわゆるおなら) に含まれるメタンガスである。図3-6に示すように、二酸化炭素については肥育期間4週目まで増加し、以降に発生量の減少が観察されているが、メタンに関しても、二酸化炭素と同様の期間変動が観察されている。

貯留区と搬出区との試験区間の比較をすれば、貯留区に比べて、メタンは搬出区の放出量が明らかに低かった

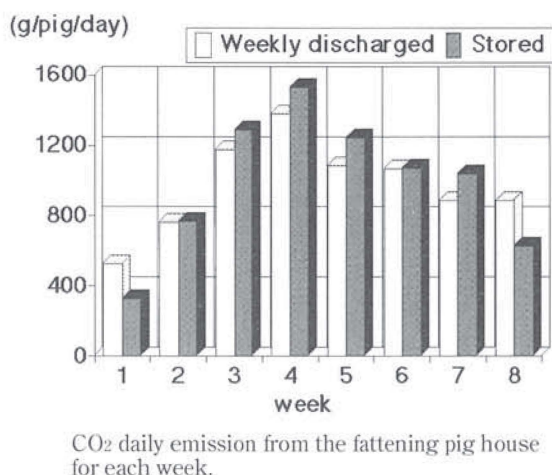


図3-6 二酸化炭素揮散量 (1日1頭あたり) の変化

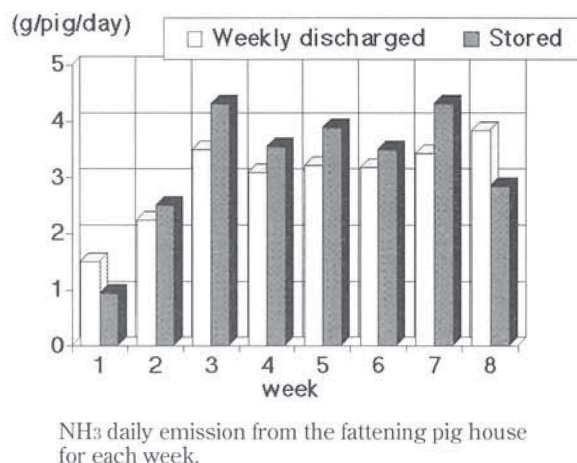


図3-7 アンモニア揮散量 (1日1頭あたり) の変化

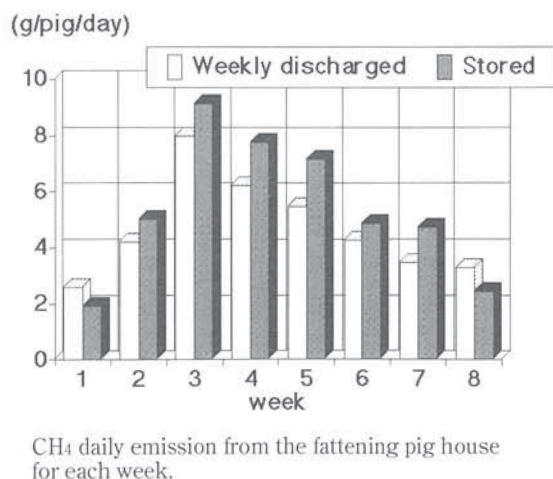


図3-8 メタン揮散量 (1日1頭あたり) の変化

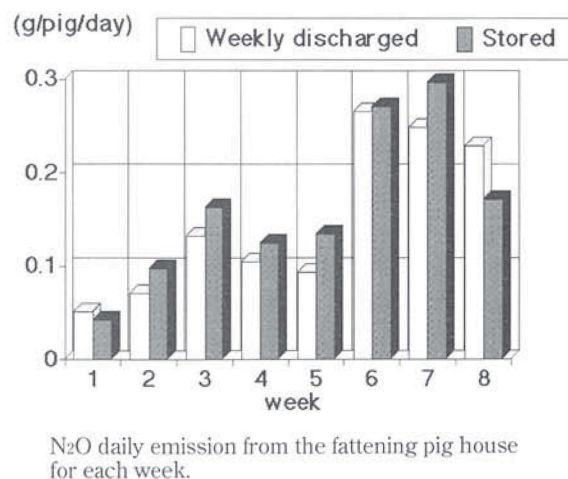


図3-9 亜酸化窒素揮散量 (1日1頭あたり) の変化

($p < 1\%$)。これは、スラリーが貯留されているか否かの差と考えられ、明らかにスラリーからメタンが発生していると確認された。このスラリーからの発生量変化が期間変動の要因とも考えられ、スラリーそのものからの発生量変動を捉える試験を実施する必要性がある。しかし、メタンの発生量においては処理区間での差異よりも期間変動が大きいことから、総メタン発生量に占める貯留時のふん尿からの割合は高い可能性がある。斉藤²³⁾によれば、豚から発生するメタンは $1.3\text{gCH}_4 \cdot \text{pig}^{-1} \cdot \text{day}^{-1}$ から $4.1\text{gCH}_4 \cdot \text{pig}^{-1} \cdot \text{day}^{-1}$ 程度と今回の結果の発生レベルに近似しており、このことから豚の飼養管理からのメタン発生の主たるものが、貯留中のふん尿ではなく、豚自体であることを示唆している。

c) 亜酸化窒素の揮散量変化

図3-9に亜酸化窒素の発生量の変化を示した。亜酸化窒素は貯留区に比べて搬出区の放出量は有意に低かった($p < 5\%$)。亜酸化窒素の放出量は両試験区とも5週目までは $0.1\text{gN}_2\text{O} \cdot \text{pig}^{-1} \cdot \text{day}^{-1}$ と低く、6週目に $0.25\text{gN}_2\text{O} \cdot \text{pig}^{-1} \cdot \text{day}^{-1}$ から $0.30\text{gN}_2\text{O} \cdot \text{pig}^{-1} \cdot \text{day}^{-1}$ と大幅に増加した。肥育期間の進行と共に畜体が大きくなり、また排泄物量も増加するため、環境負荷ガスの発生量が増加するのは当然と言える。しかし、今回の試験結果ではアンモニアなどのように、明らかにスラリーを主要な起源とする物質の増加でさえ、スラリーの増加によって単純に増加していない(図3-7)。5週目から6週目間の亜酸化窒素発生量の2.0~2.5倍の増加は排泄物量の増加率(搬出区で約1.1倍、貯留区で1.25倍)を上回るものであった(図3-9)。亜酸化窒素は、アンモニア態窒素の酸化および硝酸態窒素と亜硝酸態窒素の還元過程から副産物として発生する。しかし硝酸態窒素は貯留物からは全く検出されなかったため、本試験での亜酸化窒素の大半は硝化過程からのものと考えられる。亜酸化窒素の発生量の増加が5週目まで低かったのは、硝化に関わる微生物は増殖が遅いため、時間的に遅れがあったものと考えられる²⁾。Murakami & Kuwauka²⁵⁾も、耕地土壌の試験ではあるが、施肥窒素からの亜酸化窒素発生に関して、硝化菌増殖が原因と思われるタイムラグを報告している。

亜酸化窒素の畜舎環境からの発生頻度についての報告は少なく、Phillipsら³⁹⁾は $0 \sim 0.27\text{gN}_2\text{O} \cdot \text{LU}^{-1} \cdot \text{h}^{-1}$ の発生量を報告している。今回の我々の結果を同じ単位系で換算すると算定値として $0.06\text{gN}_2\text{O} \cdot \text{LU}^{-1} \cdot \text{h}^{-1}$ となり、比較的低めの値となる。しかし、上記のPhillipsら³⁹⁾

の試験結果は限られた2~3回/日という頻度のデータに基づいたものであり、測定値も非常に大きくばらついている。今回、我々の試験結果からも亜酸化窒素発生率の変動幅は大きく、その平均的な値を推測するには十分な変動要因の解析が必要と考えられた。平均的な算定値としては我々の提出した数値の方の信頼性は、これまでのものに比べて高いと思われる。

d) 貯留区と搬出区の比較

二酸化炭素を除く測定した環境負荷ガスにおいて、貯留区に比べて搬出区の放出量の方が有意に低かった(アンモニア、亜酸化窒素は $p < 5\%$ 、メタンは $p < 1\%$)。このことから、ふん尿の速やかな搬出が、揮散物質の畜舎内での発生抑制に効果のあることは証明された。しかし、毎週排出(搬出区)した区と貯留区との各環境負荷ガスの放出量の差異は必ずしも顕著なものではなかつ

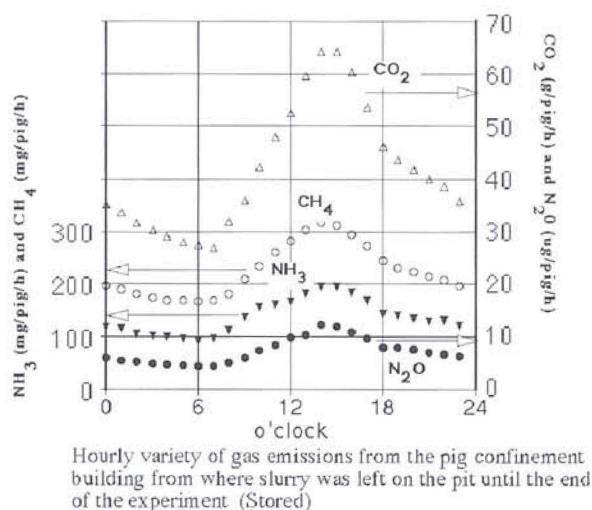
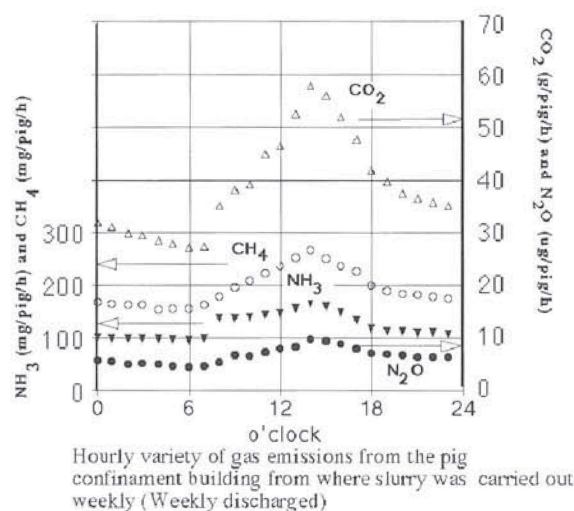


図3-10 各種環境負荷ガス発生量の日間変動
(Weekly discharged: 搬出区 [上] と Stored: 貯留区 [下])

た。すなわち、今回の試験では貯留された排泄物の量的な差異による環境負荷ガスの発生の差は大きくないと考えられた。これは貯留されたスラリーの温度が約16℃と低めだったため、全ての微生物活動が抑制されていた事も要因と考えられる。夏期の試験を行い、さらに要因を詰める必要がある。

3) 環境負荷ガス発生量の日間変動

両試験区の全データを時系列的に並べた図3-2(二酸化炭素)、図3-3(アンモニア)、図3-4(メタン)および図3-5(亜酸化窒素)に見られるように、環境負荷ガスの発生は明らかに時刻によって変動を示した。そこでデータを1時間あたりの発生量に算定して各時刻別に集計し直した。図3-10に示すように、肥育期間の各週100時間以上の1時間当たり発生量を全期間にわたって時刻別に集計・積算し、各時刻の平均発生量を算出した。集計データは測定の曜日、時期に関してほぼ均一であり、時刻別の発生量とこれらの要因との相関係数はほとんどない($r^2 < 0.005$)。

図3-10に見られるように、搬出区と貯留区の環境負荷ガスは同様な日間変動を示していた。環境温度を17℃とほぼ一定に調節した畜舎での試験にも関わらず搬出区、貯留区ともにすべての環境負荷ガス排出量が日中高く、夜間に低い傾向が明らかであった。各物質の変動幅は、二酸化炭素で2.2倍(搬出区)、2.9倍(貯留区)であり、アンモニア、メタンおよび亜酸化窒素では1.7倍(搬出区)、2.0倍(貯留区)であった。また、いずれの発生ガスも給餌が行われる8-9時頃から急上昇がみられることから、この変動は家畜の活動との関連が深いことが示唆された。二酸化炭素については、こうした日間変動があることがOuwerkerk and Pedersen³⁵⁾より報告されている。また、最近、ミネソタ大学のvan Banus氏はこのような畜舎内の揮散物質変動は餌の成分組成や飼育管理によって変動の大きさや、ピーク時間に違いが出ると指摘している(私信)。室温が調整された環境中でこういった変動は、単に日夜の温度変化による生物活性に起因するとは考えにくく、専ら家畜が原因と考えるのが妥当であろう。たとえば、毎日10~11時の給餌後1~2時間に起こっていた豚の排泄行動が、揮散物質の発生量上昇とピーク時間帯(13時~14時)とほぼ一致している事からもこのことが裏付けられる。

4) まとめ

密閉された豚舎からの吸気中と排気中のアンモニア

(NH₃)、メタン(CH₄)および亜酸化窒素(N₂O)の濃度測定値(mg・m⁻³)と各試験区の換気量(m³・hour⁻¹)の5分間の平均測定値から、各気体の5分間の放出量を次式から算出した。

放出量 E (mg/5min) =

$$(\text{排気中の濃度 (mg m}^{-3}\text{)} - \text{吸気中の濃度 (mg m}^{-3}\text{)}) \times 5/60 \times \text{換気量 (m}^3 \text{ hour}^{-1}\text{)}$$

この放出量(E)を積算して1時間当たり放出量(mg・hour⁻¹)を算出したところ、各環境負荷ガスの放出量は飼育期間で変化(期間変動)し、また時刻によっても周期的に変動(日間変動)していることが判った。

環境負荷ガスの期間変動

全ての環境負荷ガスで、貯留区に比べて搬出区の放出量は有意に低かった(アンモニア、亜酸化窒素は $p < 5\%$ 、メタンは $p < 1\%$)。アンモニアの放出量は搬出区、貯留区ともに1週目の1.0gNH₃・pig⁻¹・day⁻¹から3週目まで増加して3.5gNH₃・pig⁻¹・day⁻¹に達し、それ以降は一定値で推移した。メタンの放出量はアンモニア同様に初期から3週目まで、2.0gCH₄・pig⁻¹・day⁻¹から8.0gCH₄・pig⁻¹・day⁻¹と増加したが4週目以降は減少に転じた。亜酸化窒素の放出量は5週目までは0.1gN₂O・pig⁻¹・day⁻¹と低いが、6週目に大幅に増加した。肥育期間の進行と共に畜体が大きくなり、また排泄物量も増加するため、環境負荷ガスの発生量が増加するのは当然と言える。しかし、その増加は、単に排泄物量の増加に比例するものではなかった。

亜酸化窒素の発生量の増加が5週目まで低かったのは、発生の主体と想定される硝化に関わる微生物の増殖が遅いため、時間的に遅れがあったものと考えられる。スラリー中には、試験期間を通じて硝酸態窒素の明確な存在は確認されていない。

二酸化炭素発生量増加が見られないのは肥育豚の運動量の低下が要因にはあげられるが、さらに検討が必要であろう。

環境負荷ガスの日間変動

環境負荷ガスの発生は明らかな日間変動を示した。データは肥育期間の各週100時間以上の1時間当たり発生量を時刻別に集計・積算し、各時刻の平均発生量を算出した。集計データは測定の曜日、時期に関してほぼ均一であり、時刻別の発生量とこれらの要因との相関係数はほとんどない($r^2 < 0.005$)。

環境温度を17℃とほぼ一定に調節した畜舎での試験に

も関わらず搬出区、貯留区ともにすべての環境負荷ガス排出量が日中高く、夜間に低い傾向が明らかであった。また、給餌が行われる10～11時頃から急上昇、排泄行動時の13～14時に発生ピークがみられることから、家畜の活動との関連が深いことが示唆された。

今回の試験結果から、アンモニア (NH_3)、亜酸化窒素 (N_2O) およびメタン (CH_4) が豚1頭の肥育全期間中(8週間)に発生する量は、それぞれ181.9.1および302g/頭(貯留区)であり、ふん尿の搬出を毎週行うことで、168.8.4および268g/頭(搬出区)に、僅かながら削減できることが判った。

本論文では現行で多く行われているふん尿管理法である貯留区の値を原単位とする。この排出量は、排出されたふん尿中の全窒素に対する比率で表すと、アンモニアは7.4%、亜酸化窒素は0.29%にあたる。排出されたふん尿中の有機物(VS)に対するメタン排出量は0.24%になった。

第4章 污水处理過程からの環境負荷ガスの発生

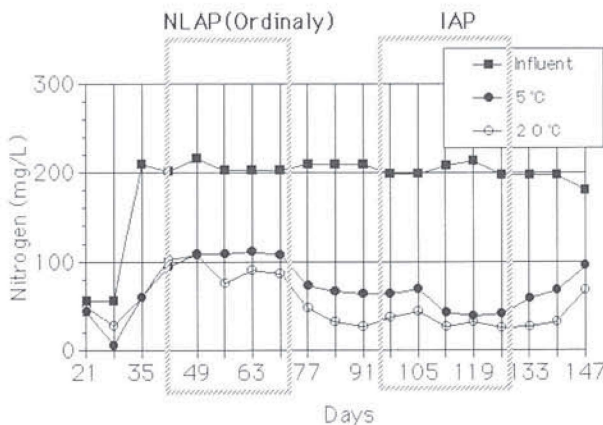
1) 污水处理試験の環境条件

a) 投入汚水の性状と污泥の馴養

本試験で揮散物質を測定するために用いた汚水性状

表 4-1 投入汚水の性状と平均処理水質
(BOD容積負荷 $0.5\text{kg m}^{-3}\text{ day}^{-1}$)

Items	Unit	Influent	NLAP(Ordinary)		IAP	
			5℃	20℃	5℃	20℃
BOD	mgO ₂ /L	1500.0	30.9	19.6	12.8	9.6
T-N	mg/L	207.0	99.7	87.8	54.5	32.0
NO _x -N	mg/L	—	16.7	19.6	6.5	6.6
T-P	mg/L	127.0	41.7	43.0	48.3	46.3



Changes of nitrogen concentration in treated wastewater
(NLAP period : 1-71 day, IAP period : 72-140 day)

図 4-1 窒素の処理効果 (BOD容積負荷 $0.5\text{kg m}^{-3}\text{ day}^{-1}$)

と、その主な汚濁物質についての処理後の性状を表 4-1 に示す。投入汚水は豚のふんに尿を混ぜた汚水を作成したのち、0.5mmのふるいで粗大固形物を除去したものを試験に供した。この汚水(原汚水)を冷蔵保存し、使用時に適宜希釈して試験に用いた。

污泥の馴養のため、各槽の水温を 5°C 及び 20°C に設定して汚水の容積負荷をBOD容積負荷 $0.25\text{kg m}^{-3}\text{ day}^{-1}$ として従来法の連続曝気(NLAP, Non Limited Aeration Process)条件で污水处理を開始した。約5週間後に汚泥濃度が約 $7000\text{mg} \cdot \text{L}^{-1}$ に達した後、BOD容積負荷を試験設定の $0.5\text{kg m}^{-3}\text{ day}^{-1}$ に上げ、処理効果の検討を始めた(図 4-1)。

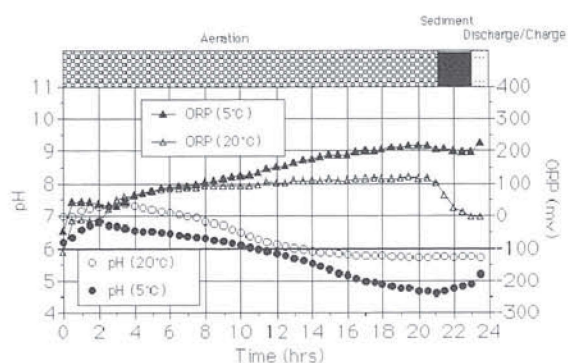
b) 連続曝気と間欠曝気による汚濁物質除去効果

容積負荷 $0.5\text{kg m}^{-3}\text{ day}^{-1}$ に対する処理水の除去効果が安定した後に連続曝気条件における処理試験を約4週間行った。この後、曝気方式を1時間間隔で曝気と停止を繰り返す間欠曝気法(IAP, Intermittent Aeration Process)に切り替えて再び処理効果が安定するまで4週間培養した後、間欠曝気方式の処理試験を約4週間継続した。図 4-1 に浄化処理の効果の検討を行った試験期間(NLAP: 42日～70日, IAP: 98日～128日)を点線枠で図示した。

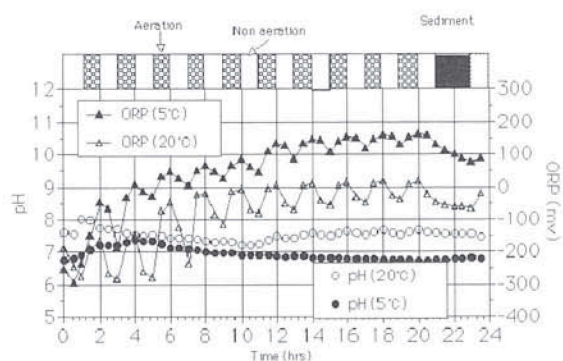
両処理方式の各温度における汚濁物質の処理状況については表 4-1 に結果(平均処理水質)を示した。全ての試験区の処理水が畜産排水に対する当面の規制値(BOD 160mgL^{-1} , Total N 140mgL^{-1})を下回る良好な結果であった。汚水の浄化効果を汚水中の各汚濁物質の減少率(除去率)で評価してみると、BODについては両区とも温度条件に関わらず98%以上の除去率、窒素については間欠曝気法の処理効率は高く、窒素の除去率が 20°C 条件では84.5%、 5°C の条件でも75%の好結果であった。連続曝気の窒素の除去率が 20°C 条件では57.6%、 5°C の条件で52%という処理効果に比べて間欠法の処理効果が高いのは、本来好気的な過程である曝気過程に嫌気的条件を交互に繰り返入れることで効率的な脱窒を可能にしているためと考えられる²⁹⁾。

c) 処理過程におけるpHとORPの変化

連続曝気と間欠曝気の処理効果の検討を行った期間の1日を選び、揮散物質の連続測定を実施し、発生環境負荷物質量の算定を行った。 5°C および 20°C の両試験槽で、連続曝気においては、污水处理試験開始より63日目、間欠曝気においては120日目に実施した。同時に処理槽内



Changes of pH and ORP during wastewater treatment
(Non limited aeration process, Ordinary)



Changes of pH and ORP during wastewater treatment
(Intermittent aeration process)

図4-2 汚水処理におけるpHとORPの変化
(NLAP, Ordinary: 連続曝気区 [上] とIAP: 間欠曝気区 [下])

の状態を把握するために、同日程で、pHとORPを30分間隔で測定した(図4-2)。

連続曝気においては、間断なく続く曝気によって酸化状態が続くためにORP値は汚水投入後の約-100mVより一貫して上昇し、5℃では200mV、20℃では100mVに達した。pHについても両温度とも、汚水投入(図4-2中の0時間)時に投入汚水中のアンモニアのために上昇し、汚水投入後2時間後にもっとも高くなり、その後の曝気による硝化の進行により、生成した硝酸態窒素のためにpH5ないしpH6まで低下した。

間欠曝気においては、曝気時間と静置時間を繰り返すため、ORPは5℃、20℃とも上下しながら緩慢に上昇した。汚水投入直後にはORPは両温度とも-300mVまで低下し、その後5℃においては150mVまで、20℃においては0mVにまで上昇するにすぎない。pHについては、両温度とも汚水投入時に投入汚水中のアンモニアのために上昇し、この数時間後にもっとも高くなり、その後の曝気により硝化が促進され、硝酸態窒素生成のために低下傾向ではあるが、硝酸態窒素が静置時間に脱窒によって除かれるために連続曝気で見られたような極度のpH低

下は見られなかった。すなわち、間欠曝気においては曝気による硝化反応と、曝気停止で低下した還元状態(低ORP)における脱窒反応がバランスよく進行していた。

温度条件による差異は、両曝気条件とも、低温(5℃)の方が20℃に比べてORPが酸化状態ではより高く、還元状態でも比較的高い値が観察された。特に間欠曝気においてORPの山と谷の差が、5℃のほうが20℃の条件よりも小さいことは明らかである。これは、微生物の活動が低温条件ではあまり高くなくないため酸化時には余剰の酸素が存在しやすく、酸化時には高く、還元時にも低下しにくいものと思われる。

またpHについても、両曝気条件とも、硝酸態窒素の集積がより顕著な5℃条件下において、20℃条件よりも低めの値で推移した。

2) 汚水処理過程からの環境負荷ガス濃度変化

汚水処理過程から発生する環境負荷ガスについて算出を行うため、それぞれの温度条件、曝気条件における排気と入気(bg, 環境空気)の対象環境負荷ガス濃度を計測した。汚水浄化の1サイクルである1日(24時間)の5分間隔の測定濃度データを、図4-3(アンモニア)、図4-4(メタン)および図4-5(亜酸化窒素)に、連続曝気区と間欠曝気区の結果を示した。各図で、上の図が連続曝気、下の図が間欠曝気の結果である。5℃および20℃の両試験槽からの排出濃度とともに、バックグラウンド(bg)として試験を行った恒温室内の空気(環境空気、入気)の各揮散物質濃度を示した。

a) アンモニアの濃度変化

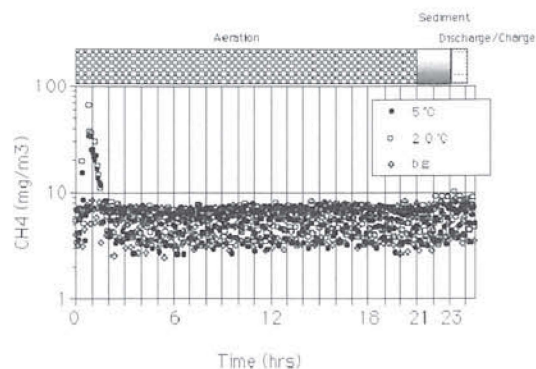
アンモニアに関しては、連続、間欠曝気の両試験区で汚水処理過程からの放出は極めて低く、検出限界($0.1\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$)に近いものであった(図4-3)。経時的に測定した24時間の排気中平均アンモニア濃度は $0.2\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$ 程度であり、温度条件でも、曝気条件においても差異は認められなかった。投入汚水は多量のアンモニアおよび有機態窒素を含んでいるが、処理槽のpH値はpH5.0からpH7.0と低く、汚水投入後にも極端に高いpH値とならないためアンモニア発生が低いものと考えられる。しかし、連続処理区の22時間経過後、すなわち汚泥分離中(Sediment)にはアンモニアの揮散が見られた。この濃度上昇はバックグラウンドにも見られ、恒温室内部にいた投入汚水を貯留した原水槽の攪拌によるものと考えられた。その後の間欠曝気区の試験時には原水槽にふたをしたことでこの現象は観察されていない(図

4-3, 間欠曝気)。

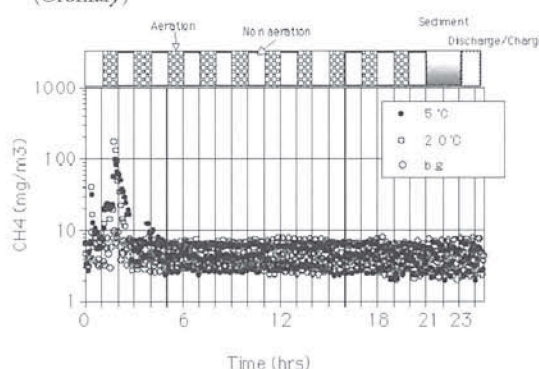
b) メタンの濃度変化

メタンに関しては汚水処理過程の初期(汚水投入後2~3時間)に極めて高い放出が、5、20℃の温度条件に関わらず両試験区で観察された(図4-4)。連続曝気区では汚水投入1時間後に最高 $66\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$ (20℃) および $33\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$ (5℃) のメタンが観測された。間欠曝気区では開始後4時間の間は明らかなメタン発生を認め、最高 $180\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$ (20℃) および $92\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$ (5℃) に達した。曝気方法で比較すると、やはり静置時間(嫌気)が設定された間欠曝気においてメタン濃度は高くなっていた。また、温度が高い条件下(20℃)で発生がより顕著で、最高濃度は間欠曝気区で $180\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$ と観測された。

汚水投入後の2-4時間経過後は、メタンの濃度はバックグラウンドと大差がなくなっていた。この試験中、メタン測定値が $\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$ にわたって短時間で変動していた。これは、バックグラウンドのメタンが通常の大気レベルの $1.3\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$ を下限値に、最高 $6.7\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$ にわたって変動していたためである。これは試験を行った

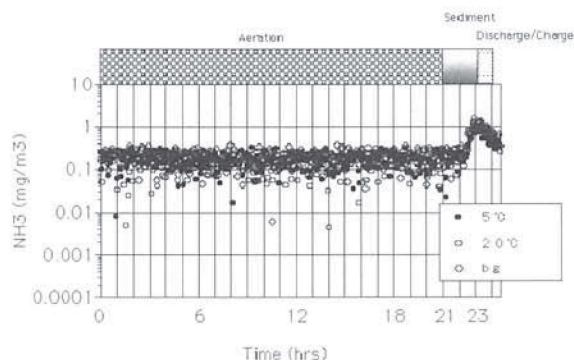


CH₄ concentration in the exhaust gas during wastewater treatment under Non Limited Aeration Process (Ordinary)

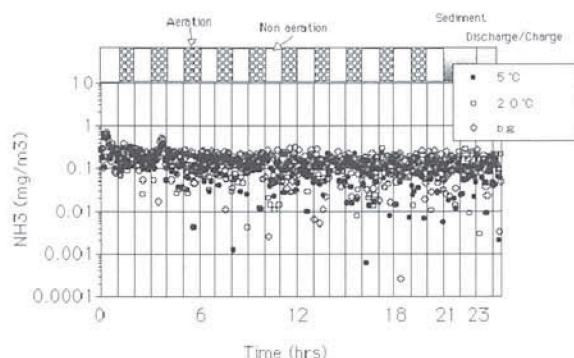


CH₄ concentration in the exhaust gas during wastewater treatment under Intermittent Aeration Process

図4-4 汚水処理における排気中のメタン濃度変化 (NLAP, Ordinary: 連続曝気区 [上] とIAP: 間欠曝気区 [下])

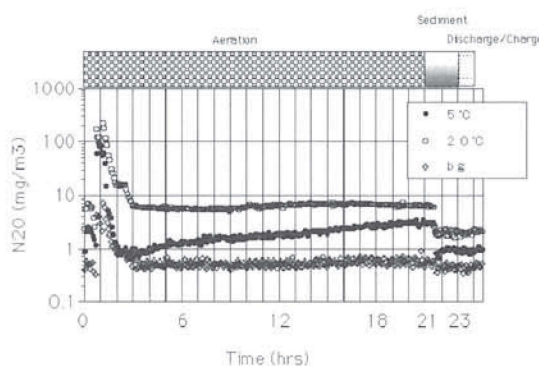


NH₃ concentration in the exhaust gas during wastewater treatment under Non Limited Aeration Process (Ordinary)

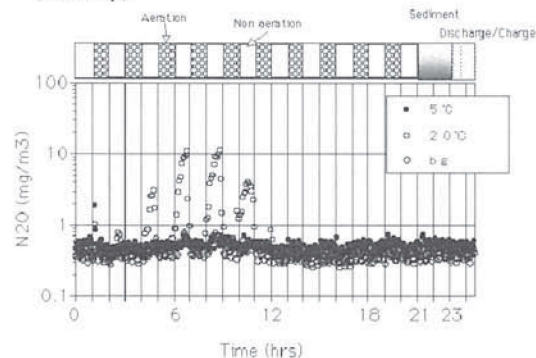


NH₃ concentration in the exhaust gas during wastewater treatment under Intermittent Aeration Process

図4-3 汚水処理における排気中のアンモニア濃度の変化 (NLAP, Ordinary: 連続曝気区 [上] とIAP: 間欠曝気区 [下])



N₂O concentration in the exhaust gas during wastewater treatment under Non Limited Aeration Process (Ordinary)



N₂O concentration in the exhaust gas during wastewater treatment under Intermittent Aeration Process

図4-5 汚水処理における排気中の亜酸化窒素濃度変化 (NLAP, Ordinary: 連続曝気区 [上] とIAP: 間欠曝気区 [下])

恒温室内でメタン発酵の装置も稼働していたため、ここからの漏れたガスの影響ではないかと考えられる。しかし、入気（バックグラウンド）の濃度を各処理槽の排気から差し引いて発生を算定しているため、排出量評価には重大な影響はないと考えられた。

c) 亜酸化窒素濃度の変化

亜酸化窒素の濃度は、連続曝気試験区の方が間欠曝気区よりも明らかに高かった（図4-5）。連続曝気区では特に汚水投入時（0時）から1時間後の極大値は $250 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-3}$ （ 20°C ）、 $92 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-3}$ （ 5°C ）にも達した。また、その後も、 $7 \sim 8 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-3}$ （ 20°C ）あるいは $1 \sim 2 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-3}$ （ 5°C ）の明らかにバックグラウンドの $0.6 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-3}$ よりも高い値が汚水処理の全行程で観察された。

連続曝気区の亜酸化窒素濃度変化をみると、処理開始21時間後の曝気が停止した後に亜酸化窒素濃度の低下が起きている。また、時間経過とともに亜酸化窒素濃度の暫増が 5°C 、 20°C の水温に関わらず観測された（図4-5）。これは亜酸化窒素が、アンモニア等の硝化過程においても発生する可能性を示唆している。

これに対し、間欠曝気区では亜酸化窒素の濃度の上昇は曝気を停止した期間、つまり静置時間に限定された。間欠曝気においては曝気中の排気には高い濃度の亜酸化窒素は観測されずに、主に曝気停止中に観測された。特に $3 \sim 10 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-3}$ におよぶ高濃度の発生は 20°C 条件下の3回目の静置期間から6回目の静置期間にのみ観測された。

家畜尿汚水は窒素濃度（今回、 $\text{T-N } 207 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ ）が極端に高く、処理水は硝酸態窒素濃度（ $\text{NO}_x\text{-N } 20 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ ）が高くなる。この条件下では脱窒に必要な電子供与体（有機物）が比較的不足することが、亜酸化窒素として窒素ガスが高い比率で発生する要因のひとつと考えられている⁵⁰⁾。

連続曝気では硝酸濃度も高く、脱窒用の有機物が不足しがちである。間欠曝気法による処理では、比較的有機物が多く残存する曝気期間の初期に嫌気時間を設けて脱窒を行うため、硝酸の過剰生成が、硝化、脱窒がバランスよく進行することで回避され、浄化効率が高いだけでなく、亜酸化窒素発生も抑制されていると考えられる^{29, 30)}。

3) 汚水処理からの環境負荷ガスの発生量の算定

前述の各試験区における環境負荷ガスの濃度測定デー

タ（図4-3, 4, 5）を1時間の平均値として算出し直し、バックグラウンド値を差し引いた後、当該処理期間の通気量（ $1.2 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ 、 $72 \text{ L} \cdot \text{h}^{-1}$ ）を、通気のない嫌気時間については槽の上部空間容積（ 3 L ）に積算して処理過程の各1時間当たりの負荷物質発生量を求めた。図4-6（アンモニア）、図4-7（メタン）、図4-8（亜酸化窒素）に、連続曝気区と間欠曝気区の結果を示した。

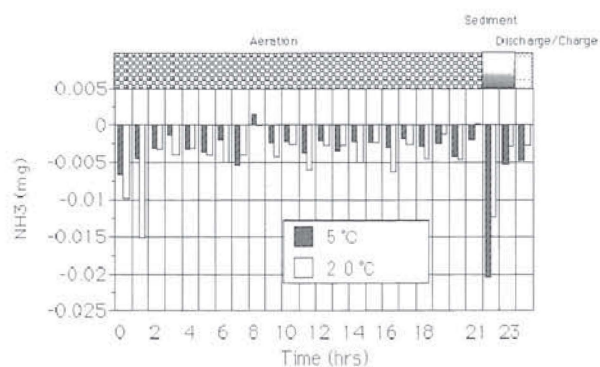
a) アンモニアとメタンの発生量

汚水処理過程から発生するアンモニア（ NH_3 ）に関しては、全ての試験区で放出は極めて低く、検出限界に近いものであった（図4-3）。このため、図4-6に見られるように、アンモニア発生量は極めて微量であり、むしろバックグラウンドより排気中濃度が低いマイナスを示す時間帯が多かった。活性汚泥処理においては、通常、汚水が投入される処理槽には汚泥を含んだ処理水が残存している。ここにアンモニアを含んだ新たな汚水が投入されても、アンモニアが揮散しやすい高アルカリ条件にはならず、また、十分な曝気処理工程があるために常に酸化的で硝化が進みやすい条件になっているためと考えられる。

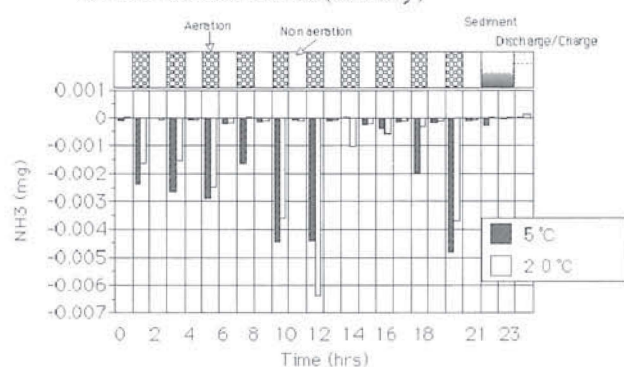
また、図4-7に示したメタン（ CH_4 ）についても、全ての試験区で顕著な発生は汚水投入直後の2時間程度に限定される。発生総量としては連続曝気区の 20°C 条件で 1.7 mg 、 5°C 条件で 0.7 mg であり、間欠曝気区では 20°C 条件で 2.7 mg 、 5°C 条件で 2.1 mg であった。この発生量は投入汚水中の全有機炭素（Total Organic Carbon）の $0.2 \sim 0.05\%$ に止まる。十分な曝気処理が行われる活性汚泥処理では、酸化的条件下で強く活性が阻害されるメタン生成菌の生育は限定的で、したがって生成されるメタンもきわめて少ないと思われる。この結果は、有効な汚水浄化処理が行われる限り、浄化処理過程からのアンモニアとメタンの発生は少ないと言える。この試験結果から、 $\text{TOC} 950 \text{ g}$ 、 $\text{T-N} 207 \text{ g}$ を含む豚ふん尿汚水 1 m^3 の浄化処理から発生するアンモニアは検出限界（ $1 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-3}$ ）以下、メタンは $0.5 \sim 2.0 \text{ gCH}_4$ と試算された。

b) 亜酸化窒素の発生量

亜酸化窒素（ $\text{N}_2\text{O-N}$ ）の放出は全ての試験区から確認された。 20°C における従来の連続曝気条件では、試験期間中の1日の投入汚水中総窒素量（処理窒素）の約5%（ 17.0 mg ）が亜酸化窒素として放出されており（図4-8）、その発生は $200 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-3}$ を越える濃度値も観測された（図4-5）。

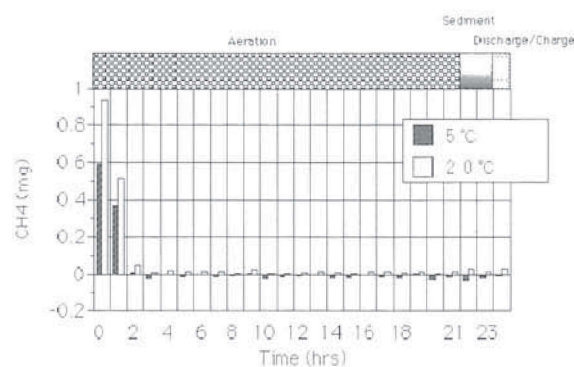


NH₃ emission during wastewater treatment under Non Limited Aeration Process (Ordinary)

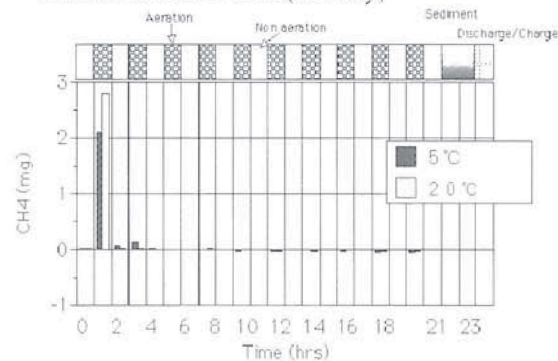


NH₃ emission during wastewater treatment under Intermittent Aeration Process

図4-6 汚水処理におけるアンモニア発生 (時間あたり)
(NLAP, Ordinary: 連続曝気区 [上] とIAP: 間欠曝気区 [下])

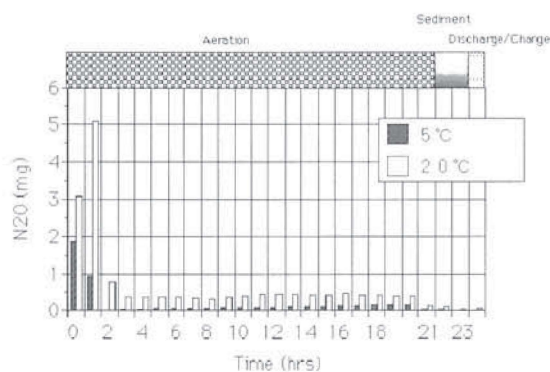


CH₄ emission during wastewater treatment under Non Limited Aeration Process (Ordinary)

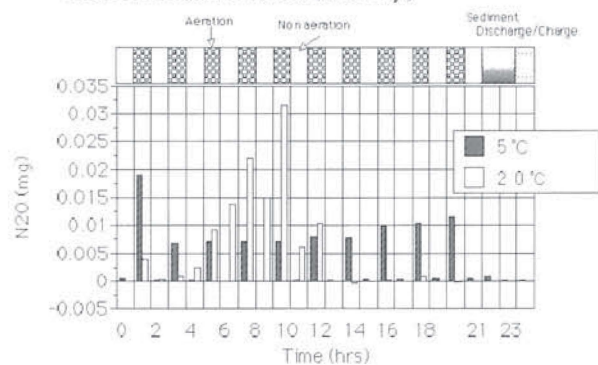


CH₄ emission during wastewater treatment under Intermittent Aeration Process

図4-7 汚水処理におけるメタン発生 (時間あたり)
(NLAP, Ordinary: 連続曝気区 [上] とIAP: 間欠曝気区 [下])



N₂O emission during wastewater treatment under Non Limited Aeration Process (Ordinary)



N₂O emission during wastewater treatment under Intermittent Aeration Process

図4-8 汚水処理における亜酸化窒素発生 (時間あたり)
(NLAP, Ordinary: 連続曝気区 [上] とIAP: 間欠曝気区 [下])

家畜尿汚水は、一般の汚水に比較して窒素濃度が極端に高い。また、汚水のBOD (100) に対する全窒素の割合は 平均値として平床式豚舎で22、ケージ、スノコ豚舎で40となっており^{10,35)}、一般的に生物処理に適したBOD:全窒素=100:5に比べて著しく窒素過剰の汚水と言える。因みに今回の処理汚水はBOD:全窒素=100:15であった。その結果、処理過程における汚水中には硝酸が多く存在する。この条件下では脱窒に必要な水素供与体 (有機物) が比較的不足することが亜酸化窒素発生要因のひとつと考えられる。

亜酸化窒素の発生は特に連続曝気区において汚水投入後2時間の曝気時に顕著であった。水温が低い条件 (5℃) では、硝化・脱窒活性が抑制され、窒素処理効率自体も悪い (表4-1) こともあり、亜酸化窒素の発生総量は4.7mgと低い、発生量の変動については20℃の場合と同様、初期の2時間が顕著であった (図4-8)。

間欠曝気区では、試験期間中の1日の亜酸化窒素発生総量は0.07mg程度であり、投入汚水に含有された総窒素の0.04%が亜酸化窒素に変換したにすぎない。この排出量は従来法である連続曝気法と比較すると、1/50～1/100であった。間欠曝気法による処理では硝酸の生

成と脱窒がバランスよく進行することで、浄化効率が高だけでなく、亜酸化窒素発生も抑制されていると考えられる。間欠曝気区では極めて低い排出量であるために、温度条件による違いの比較が難しいが、低温（5℃）における曝気時間にはおしなべて亜酸化窒素の発生が見られる。これは5℃という温度条件が硝化反応には厳しすぎるためにあまり進まず、徐々に脱窒反応が進行したためと考えられる。また20℃の条件では亜酸化窒素の発生は2回の曝気が終了した後の静置時間からの8時間に集中している。亜酸化窒素発生量の顕著であった、この5～12時間は処理水のpHの低い期間（図4-2参照）と一致しており、硝酸態窒素の存在が想定される。活発な脱窒に伴った亜酸化窒素の放出増加ではないかと考えられる。

この試験結果から、TOC950g、T-N207gを含む豚ふん尿汚水1m³の浄化処理から発生する亜酸化窒素は連続曝気で3.0～10.6gN₂O-Nと試算された。

また間欠曝気に変更することで、浄化処理から発生する亜酸化窒素は0.06～0.07gN₂O-Nに減少できる。

4) まとめ

実際の活性汚泥処理と同様の処理条件下において、5、20℃の両温度条件、連続、間欠曝気両曝気条件の全ての試験区の処理水が畜産排水に対する当面の規制値（BOD160mgL⁻¹、Total N 140mgL⁻¹）を下回る結果であった。しかし従来法である連続曝気法と間欠曝気法を比較してみると、間欠曝気法の処理効率は高く、窒素の除去率が5℃の条件でも75%の好結果であった。間欠曝気法により窒素が効率よく硝化・脱窒した事によると考えられた。

污水处理過程から発生する環境負荷ガスについては、アンモニアおよびメタンに関しては、全ての試験区で污水处理過程からの放出は極めて低く、検出限界に近いものであった。アンモニア発生量は極めて微量であり、メタンについても、発生量は投入汚水中の全有機体炭素950mgL⁻¹の0.2～0.05%に止まる。十分な曝気処理が行われる活性汚泥処理では、酸化的条件下で強く活性が阻害されるメタン生成菌の生育は限定的で、したがって生成されるメタンもきわめて少ないと思われる。この結果は、有効な污水浄化処理が行われる限り、浄化処理過程からのアンモニアとメタンの発生は少ないと言える。

しかし、亜酸化窒素の放出は全ての試験区から確認され、20℃で従来の連続曝気条件では、処理窒素の約5%が亜酸化窒素（N₂O-N）として放出されており、その発

生は200mg・m⁻³を越える値も観測された。家畜尿汚水は窒素濃度が極端に高く、処理水は硝酸濃度が高くなり、この条件下では脱窒に必要な電子供与体（有機物）が比較的不足することが発生要因のひとつと考えられる。

亜酸化窒素の発生は特に連続曝気区で污水投入2時間後の曝気時に顕著であった。連続曝気で水温が低い条件（5℃）では、窒素処理効率自体も悪いこともあり、亜酸化窒素の発生総量は4.7mgN₂O-Nと低いが、発生量の変動については20℃の場合と同様であった。

間欠曝気区では、亜酸化窒素の発生総量は温度条件によらず0.1mgN₂O-N程度であり、投入汚水中の総窒素の0.04%であった。この排出量は従来法と比較すると、1/50～1/100であった。間欠曝気法による処理では硝酸の生成と脱窒がバランスよく進行することで、浄化効率が高だけでなく、亜酸化窒素発生も抑制されていると考えられる。

この試験結果から、TOC 950g、T-N 207gを含む豚ふん尿汚水1m³の浄化処理から発生するアンモニアは検出限界（1mgNH₃-N・m⁻³）以下、メタンは0.5～2.0gCH₄、亜酸化窒素は3.0～10.6gN₂O-N（連続曝気）と試算された。また間欠曝気に変更することで、浄化処理から発生する亜酸化窒素は0.06～0.07gN₂O-Nに減少できる。

第5章 堆肥化過程からの環境負荷ガスの発生

1) 小型試験装置による堆肥化の進行状況

a) 堆肥化試験の原材料

小型の堆肥化試験装置（図2-4）を用い、合計14回の堆肥化試験を行った。発酵槽に充填した豚ふん尿混合物と副資材として用いたダンボール裁断片と完熟堆肥の性状を表5-1に示す。供試豚ふんは含水率71%、有機物が25%、乾物あたり3.5%の窒素が含有されていた。堆肥化処理試験は新鮮豚ふん約19kgに2cm角のダンボール裁断片を混合して含水率が65%程度になるように調整、

表5-1 堆肥化充填物の原材料の性状

Items	Unit	Swine waste (n=14)	Matured Compost (n=7)	Corrugated Paper (n=2)
Solid contents	%	29.3±2.0	65.0±1.2	92.7
Organic matter	%	25.0±1.4	46.7±5.4	87.2
Total N	% D.M.	3.5±0.5	3.72±0.02	0.17
NH ₄ -N	% D.M.	0.43±0.05	0.17±0.13	not detected
NO _x -N	% D.M.	not detected	0.17±0.06	not detected
pH (2N KCl)	—	7.1±0.05	7.6±0.18	6.05

表 5-2 堆肥化試験条件

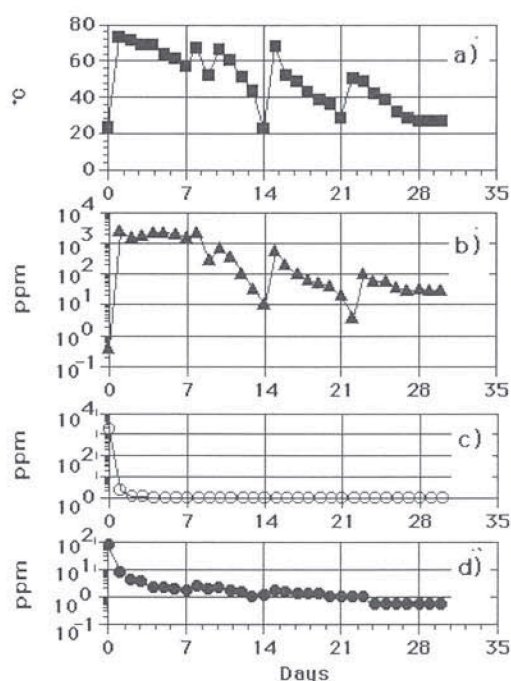
Experimental conditions for composting

Composting materials			
	Swine faces		19kg
	additives	Corrugated paper	2kg
		Matured compost	1.9kg (additives) or not (control)
Characteristics of mixture			
	Solid contents		around 35%
	Nitrogen contents (N)		around 200g (control) or around 215g (additives)
Flow late of forced aeration against composting materials			
19.3 or 38.5 or 48.1 or 57.6 or 76.9 or 96.1 L m ⁻³ min ⁻¹			
Turning of composting mixture			
weekly			

小型堆肥化装置に充填して行った。また、堆肥化を速やかに進行させるための既往技術である戻し堆肥を評価するため、完熟堆肥を豚ふん重量の10%添加した場合の各種環境負荷ガス発生量の違いも検討した。豚ふんと段ボールを混合して充填された混合物 (Control) には約200gの、これに戻し堆肥を添加した混合物 (Additives) には約215gの窒素 (N) が含まれていることになる。

b) 堆肥化の進行と終了

表 5-2 に本試験の条件設定を示す。発酵槽への通気量は実際の堆肥化施設で行われている範囲の各通気量、すなわち、19.3、38.5、48.1、57.6、76.9、及び96.1 L m⁻³



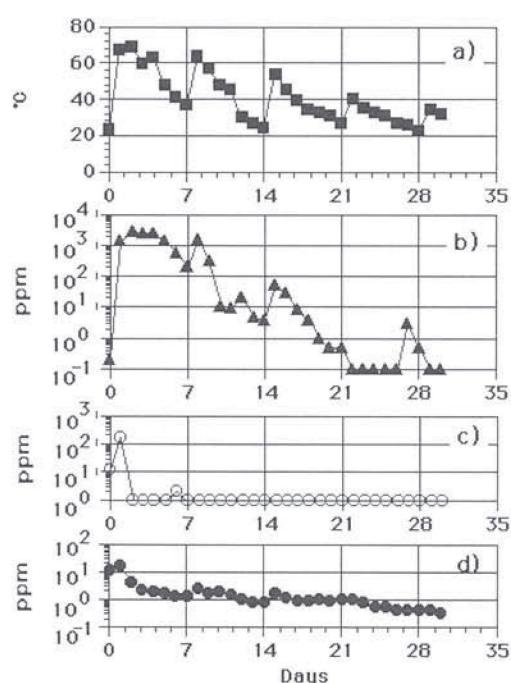
Changes of a) material temperature, b) ammonia, c) methane and d) nitrous oxide concentration of exhaust gas under 38.5 L m⁻³ min⁻¹ aeration with matured compost additional condition.

図 5-1 堆肥化過程における品温とアンモニア、メタンおよび亜酸化窒素の変化
(通気量38.5 L m⁻³ min⁻¹の場合)

min⁻¹ (混合堆積物容積あたりの通気量) に設定し、揮散物質発生総量に及ぼす影響について相互に比較し検討した。装置に充填物を投入した後は、設定された各通気量で発酵槽へ連続的に通気を行なった。

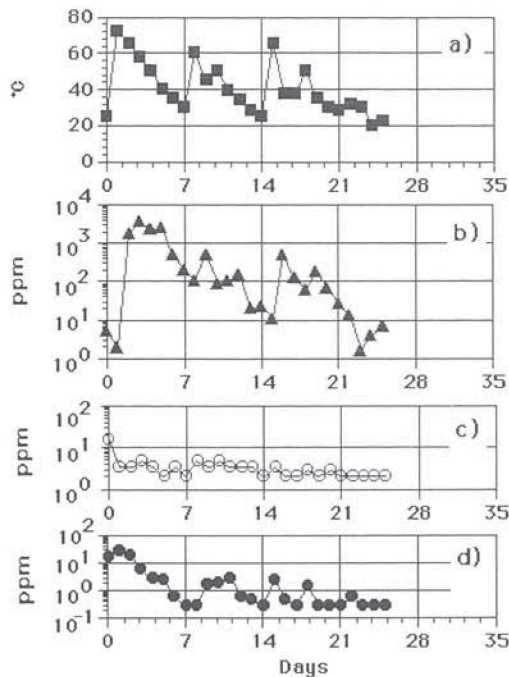
堆肥化の進行に伴う品温変化および排気中の環境負荷ガス濃度の変化の3例を、図 5-1 (通気量約38 L m⁻³ min⁻¹)、図 5-2 (通気量約77 L m⁻³ min⁻¹)、および図 5-3 (通気量約96 L m⁻³ min⁻¹) に示した。堆肥化期間中、図中の矢印に示すように、充填物は毎週切り返しを行なった。どの試験区においても良好な発酵が行われ、品温が70℃以上に上昇した。その後、3-5週間にわたる切り返し後には品温40℃以上の顕著な再上昇が見られなくなった (図 5-1a, 図 5-2a, 図 5-3a)。また週に1回の切り返しの際にサンプリングを行い、固形分、pH、含有窒素 (全窒素、NH₄-N、NO_x-N) および、BODの分析により堆肥化進行にともなう有機物分解を確認して、あわせて堆肥化の終了の判断を行った。本試験では易分解性有機性物質の分解が盛んな期間を堆肥化期間として捉え、これまでに実施した豚ふんの堆肥化試験において得られた腐熟過程における収束値であるBOD値100 mg O₂ · g⁻¹を堆肥化終了の目安とした^{20), 33)}。

堆肥化の終了時期は通気量によって若干異なるものであった。通気量が19.3 L m⁻³ min⁻¹ 程度の場合は5週間、



Changes of a) material temperature, b) ammonia, c) methane and d) nitrous oxide concentration of exhaust gas under 76.9 L m⁻³ min⁻¹ aeration with matured compost additional condition.

図 5-2 堆肥化過程における品温とアンモニア、メタンおよび亜酸化窒素の変化
(通気量76.9 L m⁻³ min⁻¹の場合)



Changes of **a)** material temperature, **b)** ammonia, **c)** methane and **d)** nitrous oxide concentration of exhaust gas under $96.1 \text{ L m}^{-3} \text{ min}^{-1}$ aeration with matured compost additional condition.

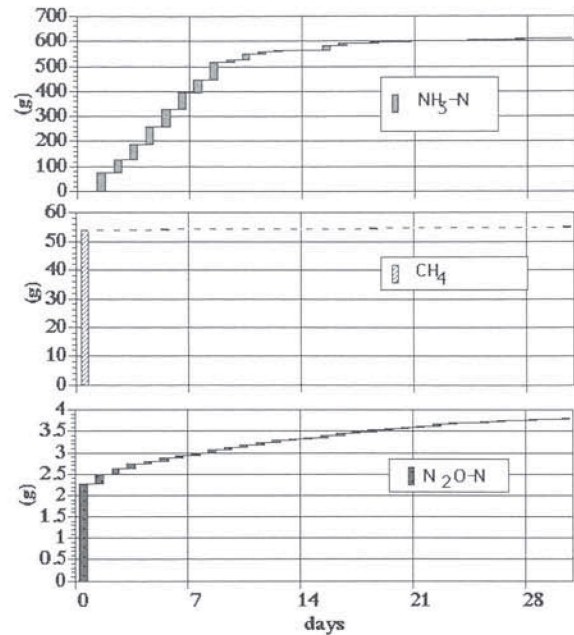
図 5-3 堆肥化過程における品温とアンモニア、メタンおよび亜酸化窒素の変化
(通気量 $96.1 \text{ L m}^{-3} \text{ min}^{-1}$ の場合)

$38.5 \text{ L m}^{-3} \text{ min}^{-1} \sim 76.9 \text{ L m}^{-3} \text{ min}^{-1}$ では 4 週間、 $100 \text{ L m}^{-3} \text{ min}^{-1}$ 近い通気量では 3 週間で堆肥化終了の目安である BOD が $100 \text{ mg O}_2 \cdot \text{g}^{-1}$ 以下まで減少し、切り返し後の品温の再上昇が顕著ではなくなった。

2) 堆肥化過程におけるアンモニア、メタンおよび亜酸化窒素の変化

図 5-1、図 5-2 および図 5-3 に示された堆肥化過程において測定されたアンモニアの一般的な消長を見ると、堆肥化初期の約 10 日間に極めて多量のアンモニア揮散が見られる。アンモニアのピークは堆積後約 24 時間に発生し、その後切り返し後約 24 時間にも再度増大するが急速に減少した (図 5-1b、図 5-2b、図 5-3b)。今回の試験における通気量の設定は、実際の堆肥化施設で実施されている条件^{10, 20, 33, 55)}を踏襲した約 $20 \sim 100 \text{ L m}^{-3} \text{ min}^{-1}$ であった。アンモニアのピーク後の濃度減少は通気量が多いほど急速であったが、濃度低下全体を見ると通気条件としては高めの $76.9 \text{ L m}^{-3} \text{ min}^{-1}$ で最も速やかであった (図 5-2b)。アンモニアの濃度変化は品温の変化 (図 5-1a、図 5-2a、図 5-3a) と極めて類似しており、揮散が品温に影響されていることが考えられた。

メタンと亜酸化窒素についても、堆肥化開始から 7～10 日間における発生が高い (図 5-1cd、図 5-2cd、図 5-



Cummuated emission of NH_3 , CH_4 , and N_2O during composting.
(under $38.5 \text{ L m}^{-3} \text{ min}^{-1}$ aeration with matured compost additional condition)

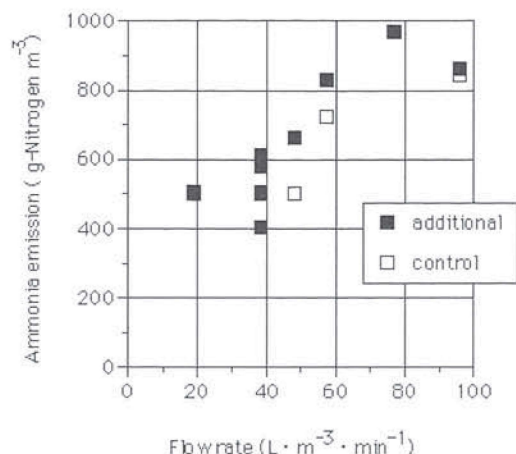
図 5-4 堆肥化過程におけるアンモニア、メタンおよび亜酸化窒素の積算発生量
(通気量 $38.5 \text{ L m}^{-3} \text{ min}^{-1}$ の場合)

3cd)。

メタン発生のピーク値は通気量の増大によって減少しており、 $38.5 \text{ L m}^{-3} \text{ min}^{-1}$ の通気では 1000 ppm を越える高濃度であったが、 $76.9 \text{ L m}^{-3} \text{ min}^{-1}$ の通気では 200 ppm 程度であり、 $96.1 \text{ L m}^{-3} \text{ min}^{-1}$ の通気では 15 ppm 程度に低下していた (図 5-1c、図 5-2c、図 5-3c)。メタンに関しては通気が良好に継続される限り、その発生は堆肥化初期に限定されると考えられた。

これに対して亜酸化窒素の濃度変化は、切り返しのたびに若干濃度の再上昇が一時的に見られる事が特徴である (図 5-1d、図 5-2d、図 5-3d)。この一時的な発生増大は堆肥化の後半でも見られた。

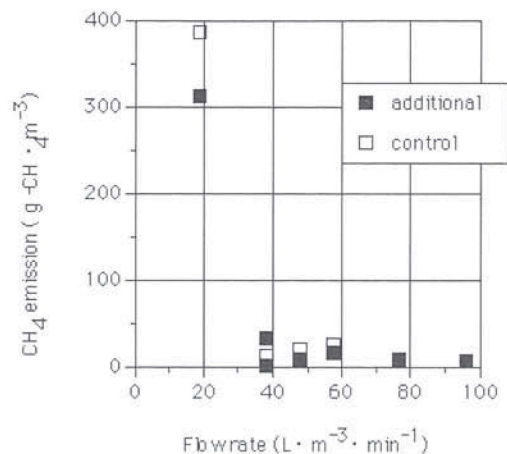
ここで観測された堆肥化過程におけるアンモニア、メタン及び亜酸化窒素の発生パターンの違いは、その積算発生量からも読みとることができる (図 5-4)。堆肥化終了時までの各気体揮散総量の 80～90% が堆肥化初期の 10 日間に揮散していることは共通するが、発生が堆肥化開始日に集中するメタン (図 5-4 中段)、堆肥化開始日の発生が最大であるが、その後も発生が継続する亜酸化窒素 (図 5-4 下段)、また、堆肥化開始から 10 日間は同レベルの高い発生が継続し、その後は発生が急速に減少するアンモニア (図 5-4 上段) と気体によって特徴を示していた。各気体で見られるこの特徴は今回の通気量の



Effect of the flow rate of forced aeration on ammonia emission during composting.

additional: additions of matured compost as a composting accelerator with swine waste and corrugated mixture
control: swine waste and corrugated mixture

図5-5 堆肥化過程における通気量とアンモニア発生量の関係
(1 m³の豚ふん堆積物の発酵全期間)



Effect of the flow rate of forced aeration on methane emission during composting.

additional: additions of matured compost as a composting accelerator with swine waste and corrugated mixture
control: swine waste and corrugated mixture

図5-6 堆肥化過程における通気量とメタン発生量の関係
(1 m³の豚ふん堆積物の発酵全期間)

範囲では変わることなく観測され、また戻し堆肥の添加によってもほとんど変わることはなかった。

3) 堆肥化過程からのアンモニア、メタンおよび亜酸化窒素の発生量

堆肥化過程からの各環境負荷ガス発生量と通気量および戻し堆肥の影響を評価するために、堆肥化に用いた充填混合物 1 m³ あたりに換算してガス発生量と通気量との相関図を作成した (図 5-5, 図 5-6, 図 5-7)。

a) アンモニアの発生量に関わる通気量と戻し堆肥の影響

図 5-5 に示すように、堆肥化過程において揮散するアンモニアの発生量と通気量の関係は相関が高かった。特に通気量 20~80 Lm⁻³ min⁻¹ のあいだでは、通気量とアンモニア発生量のあいだに一次回帰的な関係が見られた。すなわち、

アンモニア揮散量 (g m⁻³) =

$$0.313 * \text{通気量 (Lm}^{-3} \text{ min}^{-1}) + 17.44$$

$$(r^2=0.82)$$

アンモニアの発生は有機物の好氣的分解の結果であり、発酵が良好であれば揮散も大きくなるといわれる。ここでもアンモニア揮散は堆肥の品温上昇との相関が高く、この高温条件とアンモニア生成による充填物の pH

上昇が、結果としてアンモニアの揮散を促進しているものと考えられる。

しかし、通気量が 100 Lm⁻³ min⁻¹ 近い設定の場合はアンモニア発生量は、80 Lm⁻³ min⁻¹ に比して減少した。これは発酵にとって通気が過剰であり、乾燥が進み、分解に関わる微生物自体の活性が落ちたためと考えられる。これを裏付けるように 100 Lm⁻³ min⁻¹ の堆肥化では、堆肥化進行のために 3 週目の切り返し後に 1 L の加水を行う必要があった。

戻し堆肥の添加はアンモニアの発生量には目立った影響が見られないが、初期のアンモニア揮散を増加させる傾向が見られた。これは、戻し堆肥が発酵を速やかに開始させ、初期の温度上昇が急であったためと考えられる。

本試験結果からアンモニアの堆肥化過程からの発生量は、VS 108.1kg, TN 4000g を含有する 1 m³ の豚ふん堆植物あたり 400g NH₃-N~970g NH₃-N 程度の範囲にあると考えられ、充填物中の窒素あたりでは 10~25% にあたる。また本装置で切り返しの際には、この計算値では評価されないアンモニア等の揮散が起きている。この切り返し時の揮散は、切り返し前後の固形分の窒素含有量の差異から算定できない程度の少量、すなわち分析誤差程度かそれ以下であるため、最大総窒素含有量の 2~3% 以下と推定される。

b) メタンの発生量に関わる通気量と戻し堆肥の影響

図 5-6 にメタン発生量と通気量の関係を示した。メタンの発生量は通気量が $19.3 \text{ Lm}^{-3} \text{ min}^{-1}$ の場合に非常に高かった (図 5-6)。これは 1 m^3 の充填物あたりでの換算に寄れば 385 g ものメタン (CH_4) が堆肥化過程で発生することになり、有機物あたりで 0.35% という高率である。この様な低い通気条件下では空気が行き届かない部位が生じ、ここからのメタンが発生したと考えられる。通気量 $19.3 \text{ Lm}^{-3} \text{ min}^{-1}$ の条件下では、堆肥化に伴う温度変化については通気量 $38.5 \text{ Lm}^{-3} \text{ min}^{-1}$ の場合 (図 5-1a) とほぼ同様であるが、メタン発生の顕著な時期には排気中の酸素分圧が 5% 以下に落ちる事が観測され、嫌気的条件が生じたことが示唆された。

実際の堆肥化施設の多くではふん尿混合物が水分調整後堆積されるのみで、強制的な通気は行われていない。このような条件でメタン発生は主に堆積物の空気が行き届かない部分 (hot-spot) で起きる事が報告され、有機物あたり 1.3% ものメタン発生が Husted により観測されている¹³⁾。通気量が $38.5 \text{ Lm}^{-3} \text{ min}^{-1}$ の場合ではメタン発生量は減少し、 $30 \sim 40 \text{ g}$ 程度、有機物あたり 0.03% であった。嫌気的条件 (部分的にせよ) が必要とされるメタン生成は通気量を上げることによって抑制可能と考えられた。

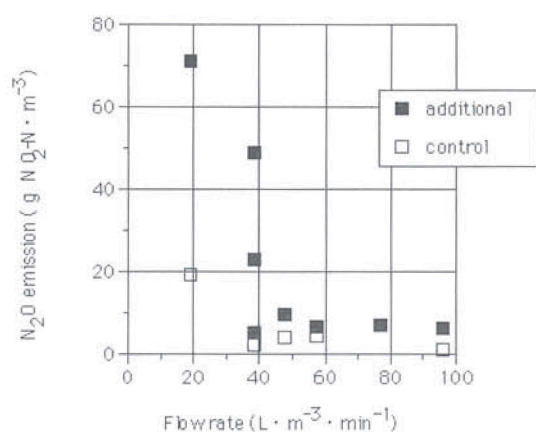
しかし、 $57.6 \text{ Lm}^{-3} \text{ min}^{-1}$ 、 $76.9 \text{ Lm}^{-3} \text{ min}^{-1}$ と通気量を

増加させてもメタンの発生総量は顕著に低下しなかった (図 5-6)。これは堆肥化初日のメタン発生を十分抑制できないためであり (図 5-4)、この発生は新鮮豚ふん中にすでに生成されていたものが堆肥化開始の通気によって追い出されてきたものと推察され不可避のものと考えられる。また、完熟堆肥の添加は堆肥化初期に若干の反応促進効果がありメタンの発生に抑制的に働く事が $19.3 \text{ Lm}^{-3} \text{ min}^{-1}$ の通気条件では観察されたが、顕著なものとは言い難い。

本試験結果からメタンの堆肥化過程からの発生量は、 1 m^3 の豚ふん堆積物あたり $0.6 \text{ gCH}_4 \sim 385 \text{ gCH}_4$ 程度の範囲にあると考えられ、充填物中の有機物 (VS) あたりでは $0.0006\% \sim 0.35\%$ にあたる。

c) 亜酸化窒素の発生量に関わる通気量と戻し堆肥の影響

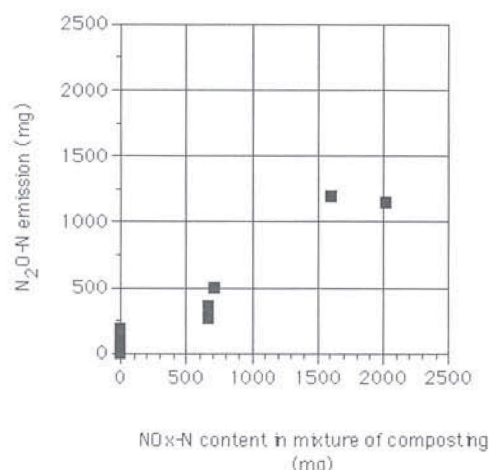
図 5-7 に亜酸化窒素発生量と通気量との関係を示した。亜酸化窒素は窒素化合物の硝化と脱窒の両方の過程から副生成物として発生する。酸素が不足した条件下での硝化反応や、分子状の酸素が存在する不十分な還元条件下での脱窒の際など、主反応が進みにくい環境下で多く発生することが知られている⁵⁶⁾。図 5-7 に示すように、通気量が $19.3 \text{ Lm}^{-3} \text{ min}^{-1}$ の場合が最も亜酸化窒素発生が高く、通気量の増大に従って発生量は減少している。



Effect of the flow rate of forced aeration on Nitrous oxide emission during composting.

additional: additions of matured compost as a composting accelerator with swine waste and corrugeted mixture
control: swine waste and corrugeted mixture

図 5-7 堆肥化過程における通気量と亜酸化窒素発生量の関係
(1 m^3 の豚ふん堆積物の発酵全期間)



Relationship between NOx-N content in mixtures of composting and N2O emission during their composting

図 5-8 堆積物中の酸化態窒素 (硝酸と亜硝酸) 含有量と堆肥化過程における亜酸化窒素発生量の関係
(1 m^3 の豚ふん堆積物の発酵全期間)

通気量 $19.3\text{Lm}^{-3}\text{min}^{-1}$ と $57.6\text{Lm}^{-3}\text{min}^{-1}$ を比較すると $57.6\text{Lm}^{-3}\text{min}^{-1}$ の場合では亜酸化窒素の発生量は $19.3\text{Lm}^{-3}\text{min}^{-1}$ のその1/5～1/20と低く抑えられていた。このように亜酸化窒素の発生も、メタン同様、通気量を上げることによって、部分的にせよ嫌氣的条件をつくらないようにして、不十分な還元状態の脱窒を抑制し、硝化反応を十分進行させることにより低減が可能と考えられた。

また、亜酸化窒素については、戻し堆肥の添加によって発生の増大が見られた。図5-7に示すように、明らかに戻し堆肥を添加した試験区で、特に通気量が低い設定の試験区ほど亜酸化窒素発生量が高かった。これは、戻し堆肥の中に含まれる、脱窒の対象となる酸化態の窒素(硝酸と亜硝酸)が原因ではないかと思われる。新鮮豚ふん中にはほとんど酸化態の窒素は観察されないため、戻し堆肥を加えない対照区では、同じ $19.3\text{Lm}^{-3}\text{min}^{-1}$ の少ない通気条件でも亜酸化窒素の発生量は格段に小さい(図5-7)。

図5-8は、今回の試験における充填物中酸化態窒素量(N mg m^{-3} of mixture)と発生した亜酸化窒素($\text{N}_2\text{O-N}$, N mg m^{-3} of mixture)との関係を図示したものである。充填物中の酸化態窒素の増加に伴い、亜酸化窒素発生量が増大する傾向が明らかである。このことは、強制通気型の堆肥化における堆肥化初期の脱窒からの発生が亜酸化窒素発生的主要原因と推測される。

本試験結果から亜酸化窒素の堆肥化過程からの発生量は、 1m^3 の豚ふん堆積物あたり $1.9\text{gN}_2\text{O-N}$ ～ $19.2\text{gN}_2\text{O-N}$ 程度の範囲にあると考えられ、充填物中の窒素あたりでは0.05%～0.48%にあたる。しかし、亜酸化窒素の発生量は堆肥化処理に関わる総窒素量よりも酸化態窒素含有量に依存する(図5-8)ことが明らかであり、この点は今後想定される亜酸化窒素の発生原単位の算定や抑制対策を効果的に行うためには注意すべきことと考える。

4) まとめ

堆肥化過程において測定されたアンモニア、メタンおよび亜酸化窒素揮散の一般的な消長を見ると、堆肥化初期の約10日間に極めて多量のアンモニア揮散が見られる。しかしこの発生のピークは堆積後約24時間後であり、その後減少するが、次の切り返し後24時間にも再度増大して急速に減少した。メタンと亜酸化窒素についても、堆肥化開始後7～10日間における発生が高い。

堆肥化終了時までの各気体揮散総量の80～90%が堆肥化初期の10日間に揮散していることは共通するが、発生

が堆肥化開始日に集中するメタン、堆肥化開始日の発生が最大であるが、その後も発生が継続する亜酸化窒素、また、堆肥化開始から10日間は同レベルの高い発生が継続し、その後は発生が急速に減少するアンモニアと発生する物質によって特徴を示していた。各気体で見られるこの特徴は今回の通気量の範囲では変わることなく観測され、また戻し堆肥の添加によってもほとんど変わることとはなかった。

堆肥化過程において発生するアンモニア、メタンおよび亜酸化窒素揮散総量と通気量との関係はどの気体についても相関が高かった。通気量が $19.3\text{Lm}^{-3}\text{min}^{-1}$ の場合が最も亜酸化窒素発生が高く、通気量の増大に従って発生量は減少している。通気量 $19.3\text{Lm}^{-3}\text{min}^{-1}$ と $57.6\text{Lm}^{-3}\text{min}^{-1}$ を比較すると $57.6\text{Lm}^{-3}\text{min}^{-1}$ の場合では亜酸化窒素の発生量は $19.3\text{Lm}^{-3}\text{min}^{-1}$ のその1/5～1/20と低く抑えられていた。部分的にせよ嫌氣的条件が必要とされるメタンと亜酸化窒素の発生は、通気量を上げることによって抑制可能と考えられた。しかしアンモニアの場合、通気量を上げることによって揮散総量が増大した。当初の堆積物中の窒素含有量(約 $4000\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)の10～20%に当たる窒素が堆肥化過程でアンモニアとして揮散した。

また、完熟堆肥の添加は堆肥化初期に若干の反応促進効果がありメタンの発生に抑制的に働く事が低い通気量条件下の実験で観察されたが、アンモニアの発生には影響なく、亜酸化窒素については、逆に発生の増大が見られた。これは完熟堆肥中に含有される NO_x のためと思われる。

第6章 豚舎、污水处理、堆肥化処理からの環境負荷ガス放出原単位と放出抑制

今回の試験結果から、豚1頭の生産のために、副次的に生産されるアンモニア、亜酸化窒素およびメタンの総量を試算した。算出は以下の3つの発生量を加算して求めることができる。

1) 豚舎からの発生

豚1頭が8週間の肥育全期間中に発生する各気体の発生総量(第3章 豚舎からの環境負荷ガスの発生)

2) 污水浄化処理からの発生

肥育期間中に豚1頭から排出されたふん尿のうち、液状部分を浄化処理したときに発生する各気体発生総量(第4章 污水处理過程からの環境負荷ガスの発生)

3) 堆肥化処理からの発生

肥育期間中に豚1頭から排出されたふん尿のうち、固

形部分を堆肥化したときに発生する各気体発生総量（第5章 堆肥化過程からの環境負荷ガスの発生）

1) の豚舎からの発生については、肥育豚40頭からの発生量が測定されている（第3章）ため、ここから単純にわり算で算出することが可能である。なお、肥育豚としての飼養にはいる以前の誕生から20kg程度までの肥育期間については、ふん尿排泄量も小さいため本論文では考慮しなかった。また、20kg以前の子豚からの発生を算定する場合、飼養形態も肥育豚とは異なるため、繁殖豚の飼養からの揮散として計上する事が妥当と考えている。

2) 污水浄化処理からの発生と 3) 堆肥化処理からの発生については、肥育期間中に豚1頭から排出されたふん尿の総量が必要である。また、そのふん尿総量を固液分離した後のそれぞれの質量と性状が必要である。つまり分離後の液分を污水处理に、固分を堆肥化に配分して処理を行ったと仮定して、各章で得られた発生係数をかけていくことで算出される。

肥育試験の結果（表3-1）から、試験期間中の飼料摂取は1頭あたり約120kgであり、飼料中の窒素含有率（3.03DM%）との積で肥育豚1頭当たりの窒素給与量は約3.7kgと算出される。さらに試験期間中の肥育豚1頭当たりの排出されたふん尿混合物量は約300Lと算定され、スラリー乾物含有率と乾物当たり窒素含有量から試験期間中のスラリーとしての総窒素排出量は約2.07kg（ふん由来1.06kg、尿由来1.01kg）と試算された。

また、この豚舎から発生したふん尿を固液分離した場合、固形分中には1.34kg、液状物中には0.73kgの窒素が移行するものと推定した。この分離比は、羽賀らの調査資料^{10,55)}の一般的な固液分離に関するデータに基づく。ここで分離された固形分を堆肥化、尿汚水は活性汚泥処理した場合に放出される各種環境負荷ガスの揮散総量を、本試験の堆肥化（第5章）、および污水处理（第4章）における各環境負荷ガス放出結果を元に、アンモニアと亜酸化窒素については投入される窒素当たり、メタンについては有機物あたりで換算して算定した。結果を図6-1に示す。

1) 豚舎からの放出原単位

強制換気システムを備えた飼養試験室で温風機と換気量の調整によって16～17度の室温に保ち、肥育豚の30kgから90kg程度までの8週間全肥育期間についてアンモニア、メタンおよび亜酸化窒素の発生量を検討した（第3章）。物質揮散量の算定に必要なデータ、すなわち

吸気と排気の各物質濃度と換気量については、できる限り連続的にデータを採取した。1週あたり100時間以上（168時間中）で全期間8週間のうち70%の時間の測定値を得ることができた。データは時刻（0時～24時）や時期（1～8週目）による偏りが起きないように、日中、夜半に限らず収集された。後述の時刻毎のデータ集計の結果では、収集データの収集時刻と収集された時期（飼育経過週日）との間の相関値は $r^2 = 0.003$ と極めて低く、互いに独立していると考えられた。今回の試験では連続測定を行うことで、環境負荷ガスの発生には最大4倍の期間変動および最大3倍の日間変動があることが判った。これは肥育期間中の数日あるいは数時間という、比較的短期間の測定値を基にしたこれまでの成果からの試算には問題があることを明確に示している。本試験の結果より、少なくとも、畜舎内での同様の発生を試算・推定するためには、肥育ステージおよび日間変動を考慮した数日単位の昼夜測定が必要と思われる。

今回の試験結果から、アンモニア（ $\text{NH}_3\text{-N}$ ）、亜酸化窒素（ $\text{N}_2\text{O-N}$ ）およびメタン（ CH_4 ）が豚1頭の肥育全期間中（8週間）に発生する量は、それぞれ149, 5.8および302g/頭（貯留区）であり、ふん尿の搬出を毎週行うことで、138, 5.4および268g/頭（搬出区）に、僅かながら削減できることが判った。家畜生産に伴って畜舎で発生する環境負荷ガスについては、アンモニア以外の物質の放出に関してはデータが極めて少ない。

アンモニアの畜舎での揮散総量（kg）は、一般に、飼養した家畜の生体重（Live weight, kg）500kgあたり、1年間（year）に換算して算出されたデータが多い。Hartung and Phillips, の総説¹¹⁾やOldenburg²⁸⁾がこれまで測定してきたアンモニアの発生量によれば、今回と同様の、一般的な豚舎形態からの発生算定値は非常に広いレンジ（ $10.5 \sim 39.4 \text{ kg LU}^{-1} \text{ year}^{-1}$ ）にばらついている。本試験の結果を、この単位系に換算すると $11.8 \text{ kg LU}^{-1} \text{ year}^{-1}$ となり、これまでに報告された上記のアンモニア発生量の中では低めに位置する。

これまでの発生算定値がばらついている主な原因は、今回の試験で見られた環境負荷ガス発生量の最大4倍の期間変動および最大3倍の日間変動によるものと考えられる。また、多くの研究者は昼の時間帯に測定時間を設ける。今回の試験で見られた環境負荷ガス放出が、昼に高く夜に低い傾向は、推定値が高めにでてくることをよく説明している。この点で、今回の試験結果は比較的信憑性が高いものとする。

しかし、低めのアンモニア発生量の原因は、温度管理

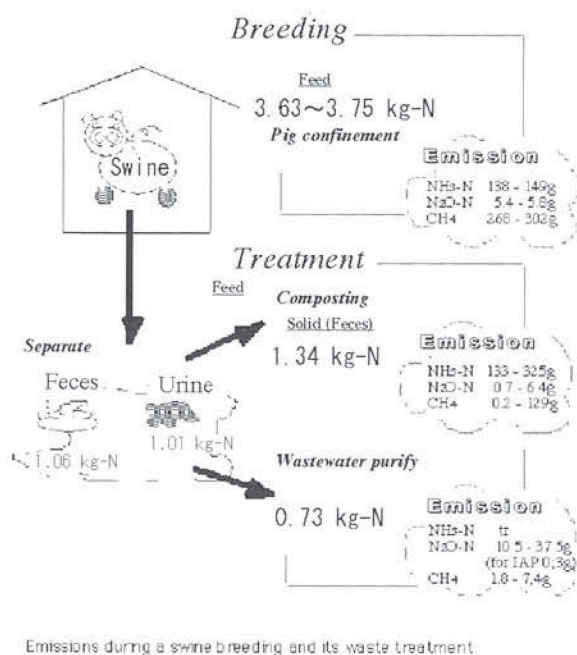


図6-1 豚の飼養系から発生する環境負荷ガス
(1頭の肥育豚を飼育する全期間から発生するアンモニア、メタン及び亜酸化窒素)

を行ったとはいえ、2-5℃に外気温の低下する冬の飼養試験であることが要因の一つとも考えられる。さらに、この環境負荷ガスの発生には畜舎の形態、特にふん尿貯留に関連した床構造、飼育期間の温度条件や飼育条件も当然影響する。

環境問題への意識の高まりや動物福祉への配慮から、農業系、特に畜産系からの環境負荷ガスの発生にも抑制が求められるようになって来つつあるが、信頼性の高い発生源単位の算定のためには、さらにこのような試験を重ねる必要がある。

2) 污水处理からの放出原単位

回分式活性汚泥装置を用いて污水处理試験をおこない、固液分離後の豚舎汚水の浄化処理過程から発生する環境負荷ガスを検討した(第4章)。污水处理試験は、通常の畜産農家で行われている回分式活性汚泥処理の条件に準じて行われた。1日、24時間を1処理サイクルとしてBOD容積負荷 $0.5\text{kg m}^{-3}\text{ day}^{-1}$ とし、入気中(外気)、処理槽上部の空間から採取した排気中の各環境負荷ガス濃度を約5分毎に測定、該当環境負荷ガス濃度差に、時間当たり通気量を乗じて発生総量を算定した。污水处理過程から発生する環境負荷ガスについては、アンモニアおよびメタンに関しては、全ての試験区で放出は極めて低く、検出限界に近いものであった。

アンモニアの発生量は極めて微量であり、最大1

$\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$ 程度の発生濃度に止まる。メタンについても、発生量は投入汚水中の全有機体炭素(TOC 950mgL^{-1})の0.2~0.05%に止まる。十分な曝気処理が行われる活性汚泥処理では、酸化的条件下で強く活性が阻害されるメタン生成菌の生育は限定的で、したがって生成されるメタンもきわめて少ないと思われる。この結果から、有効な污水浄化処理が行われる限り、浄化処理過程からのアンモニアとメタンの発生は少ないと言える。今回の試験結果から、TOC 950g、T-N 207gを含む豚ふん尿污水1 m^3 の浄化処理から発生するアンモニアは検出限界(1 $\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$)以下、メタンは0.5~2.0gCH₄と試算された。

しかし、亜酸化窒素の放出が全ての試験区から確認され、20℃で従来の連続曝気条件では、汚水中全窒素量の約5%が亜酸化窒素として放出されており、その発生は $200\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$ を越える値も観測された。この結果、T-N 207gを含む豚ふん尿污水1 m^3 の浄化処理から発生する亜酸化窒素は3.0~10.6gN₂O(連続曝気)と試算された。この発生比率(処理全窒素量に対する亜酸化窒素発生量の比率)を元に、豚ふん尿污水浄化処理からの放出推定値として、10.5g~37.5gN₂O-N/頭の亜酸化窒素発生が試算された(図6-1)。污水浄化処理からの亜酸化窒素放出総量に関して直接比較できる適当な試験結果はないが、ふん尿混合状態(スラリー)の排泄物で曝気処理試験が英国でもなされ、やはり投入窒素の11%にも及ぶN₂Oの放出を問題視した報告がなされている⁴⁾。家畜尿污水は窒素濃度が極端に高く、処理水は硝酸濃度が高くなる。この条件下では脱窒に必要な水素供与体(有機物)が比較的不足することが亜酸化窒素の発生要因のひとつと考えられる。この様な物質の人為的発生がその反応に関連する窒素量の数%に及び、また年間に扱われる窒素量は全世界で101Tg²²⁾という膨大さから勘案すると地球環境に対する長期的影響への懸念も当然であろう¹⁴⁾。これまで亜酸化窒素の発生条件等の基礎的な研究はなされてきている⁵⁶⁾が、発生実体を把握する試みは、開始されたばかりである。畜舎汚水と同様に窒素濃度の高い尿尿処理の現場での亜酸化窒素発生に関し、高濃度の亜酸化窒素の発生値を示し、新たな環境問題として提起する報告も見られる³²⁾。

本試験では、T-N 207gを含む豚ふん尿污水1 m^3 の浄化処理から発生する亜酸化窒素は、間欠曝気を採用することで従来法の1/50~1/100である0.06~0.07gN₂O-Nに減少できることが判ったが、これが十分な制御レベルにあるかは不明である。汚水を浄化して水質汚濁を防止する代償として亜酸化窒素が発生する事実は、畜産汚水

処理に止まらず、污水浄化処理のあり方の再検討を迫る問題となる可能性がある。

本試験の結果から、豚ふん尿污水浄化処理からの放出推定値として、アンモニアについては検出限界以下、メタンについては $1.8\sim 7.4\text{gCH}_4/\text{頭}$ 、亜酸化窒素については $10.5\text{g}\sim 37.5\text{gN}_2\text{O-N}/\text{頭}$ と試算された（図 6-1）。

3) 堆肥化過程からの放出原単位

本試験結果からアンモニアの堆肥化過程からの発生量は、VS 108.1kg、T-N 4000gを含有する 1m^3 の豚ふん堆植物あたり $400\text{gNH}_3\text{-N}\sim 970\text{gNH}_3\text{-N}$ 程度の範囲にあると考えられ、堆肥化初発の堆植物中窒素量の約10～20%がアンモニアとして堆肥化期間中に揮散することが示された。この発生割合は、Petersenら³⁷⁾やSommerら⁴⁶⁾が10～20 m^3 という比較的規模の大きい家畜ふんの堆肥化を行って得た結果の15～30%と近似している。また、すべての環境負荷ガス発生が堆肥化の初期に集中し、全発生の9割以上が堆肥化初期の10日間で起こる事もわかった。

メタンの堆肥化過程からの発生量は、VS 108.1kg、TN 4000gを含有する 1m^3 の豚ふん堆植物あたり $0.6\text{gCH}_4\sim 385\text{gCH}_4$ 程度の範囲にあると考えられ、充填物中の有機物(VS)あたりでは0.0006%～0.35%にあたる。亜酸化窒素については $1.9\text{gN}_2\text{O-N}\sim 19.2\text{gN}_2\text{O-N}$ 程度の範囲にあると考えられ、充填物中の窒素あたりでは0.05%～0.48%にあたる。堆肥化過程についての文献でアンモニア以外の発生量を定量的に捉えた報告事例は少なく、比較できる文献がない。今回の試験結果からも、量的に見れば、通常の堆肥化処理において問題視されるのはアンモニアであり、メタンと亜酸化窒素については好氣的な発酵条件である限りにおいては、堆肥化処理が大きな発生源にはならないと考えられた。

堆肥化過程において発生するアンモニア、メタンおよび亜酸化窒素揮散総量と通気量の関係はどの気体についても相関が高かった。通気量が比較的小さい $19.3\text{Lm}^{-3}\text{min}^{-1}$ の場合が最も亜酸化窒素発生が高く、通気量の増大に従って発生量は減少している。通気量 $19.3\text{Lm}^{-3}\text{min}^{-1}$ と $57.6\text{Lm}^{-3}\text{min}^{-1}$ を比較すると、 $57.6\text{Lm}^{-3}\text{min}^{-1}$ の場合では亜酸化窒素の発生量は $19.3\text{Lm}^{-3}\text{min}^{-1}$ のその1/5～1/20と低く抑えられていた。部分的にせよ嫌氣的条件が必要とされるメタンと亜酸化窒素の発生は、通気量を上げることによって抑制可能と考えられた。しかしアンモニアの場合、通気量を上げることによって揮散総量が増大した。

また、完熟堆肥の添加は堆肥化初期に若干の反応促進効果があり、メタンの発生には抑制的に働く事が低い通気量条件下の実験で観察されたが、アンモニアの発生には影響なく、亜酸化窒素については、逆に発生の増大が見られた。これは完熟堆肥中に含有される NO_x のためと思われる。

この試験結果から堆肥化過程からの発生はアンモニアが $133\sim 325\text{gNH}_3\text{-N}/\text{頭}$ 、メタンが $0.2\sim 129\text{gCH}_4/\text{頭}$ および亜酸化窒素が $0.7\sim 6.4\text{gN}_2\text{O-N}/\text{頭}$ と試算された。

4) 各過程からの環境負荷ガス放出抑制

アンモニア、亜酸化窒素およびメタンが豚1頭の8週間にわたる肥育全期間中に豚舎から発生する量は、ふん尿の搬出を毎週行うことでわずかながら減少させることができる事が判った。しかし、その効果は数%の削減にすぎず、ふん尿の迅速な搬出効果がさほどではなかった。これは今回貯留されたスラリーの温度が約 16°C と低めだったため、全ての微生物活動が抑制されていた事や、貯留スラリーが比較的lowのpHで推移($\text{pH}6.8\sim 7.0$)した事が要因とも考えられる。また、今回の試験は環境温度が制御可能な畜舎の結果ではあるが、導入外気温が $2\sim 5^\circ\text{C}$ の冬季のデータであり、同様な試験を夏期にも行って比較してみる必要がある。

これらの発生量は飼養条件、すなわち給餌方法、餌の質や畜舎構造などにより大きく変化する可能性があるため、飼養形態の検討によって大きく削減できる可能性がある。

污水処理で問題視される亜酸化窒素の放出は、間欠曝気法に変更することで従来法の約1/50～1/100に削減が可能であった。間欠曝気法は従来法と同様にアンモニア、メタンの放出量は低く抑えられ、污水浄化処理効果も高いため、従来法の代替技術として現場に導入されていく可能性が高い。間欠曝気法による処理では硝酸の生成と脱窒がバランスよく進行することで、浄化効率が高いだけでなく、亜酸化窒素発生も抑制されていると考えられる。

しかし、間欠曝気処理において従来の1/100まで亜酸化窒素放出が低減できても、いまだ投入窒素の0.04%を亜酸化窒素で放出してしまう。亜酸化窒素の高い温暖化効果を考慮すると、こういった処理がいつまでも容認される保証がないため、さらなる削減策にもとりくむ必要があるだろう。たとえば亜酸化窒素を発生しにくい硝化・脱窒菌の選抜や分子育種などは、これまでの遺伝子工学的手法によって可能となっていくだろう。また畜産

業が農業である以上、その終末処理に污水浄化というふん尿資源を多大なエネルギーの投入によって栄養塩類を除去する技術自体を採用しない方法を模索する必要もあるだろう。

堆肥化処理では、まず、アンモニアの発生抑制が資源循環の側面でも求められる。適正な通気条件を設定することで、堆肥化の速やかな進行を妨げることなくある程度のアンモニアの発生抑制が可能である。しかし、それでも投入窒素の10%以上がアンモニアとして揮散してしまう。堆肥化は好気性微生物による有機物の酸化的分解が主な反応である。その過程で有機体窒素がアンモニアへと分解され、それ自体がもたらす堆積物pHの上昇と堆肥化による堆積物の品温上昇によって、アンモニアの発生は促進される。有機性窒素化合物の分解によって生じたアンモニアを堆肥化条件のなかで資化する（再有機化）微生物の検索や、発生したアンモニアをトラップする効果的な手法の開発が急務である。

また、亜酸化窒素については、完熟堆肥中の硝酸態窒素がその主な発生原因であるため、戻し堆肥と呼ばれる堆肥化技術の見直しを行う必要があるだろう。メタンに関しては、適正な通気が行われる限りにおいて、堆肥化過程からの揮散が問題視されることはないと思われる。

以上の結果から各環境負荷ガスの主な発生源となっているのは、アンモニアについては畜舎と堆肥化処理、メタンについては畜舎と一部の堆肥化処理、亜酸化窒素については污水处理と結論された。

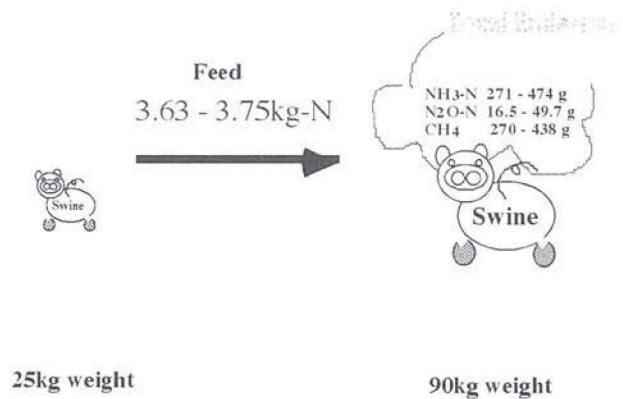
第7章 総合討論

環境負荷ガス（アンモニア、メタン、亜酸化窒素等）の発生が、広域の環境に負荷となる事が懸念され、その実態解明が緊急課題となっている¹⁰⁾。

筆者らは豚1頭が生産される間に発生する各環境負荷ガス総量を算出することを試みた。発生が起これらと思われるプロセスを豚舎飼養、污水浄化処理および堆肥化処理の3つに分けて検討した。

1) 単位質量の豚舎污水からの環境負荷ガス発生原単位を推定するため、主要な処理方式である污水处理過程からの発生について実験室レベルの試験装置で検討した。

その結果、TOC 950g、T-N 207gを含む豚ふん尿污水1 m³の浄化処理から発生するアンモニアは検出限界（1 mg m⁻³）以下、メタンは0.5～2.0gCH₄、亜酸化窒素は3.0～10.6gN₂O-N（連続曝気）と試算された。また間欠曝気に変更することで、浄化処理から発生する亜酸化



Total emissions during a swine breeding and its waste treatment

図7-1 豚1頭の肥育過程から発生する環境負荷ガス

窒素は0.06～0.07gN₂O-Nに減少できることが確認された。この発生比率を元に豚ふん尿污水浄化処理からの放出推定値として、アンモニアについては検出限界以下、メタンについては1.8～7.4gCH₄/頭、亜酸化窒素については10.5～37.5gN₂O-N/頭の発生が試算された（図6-1）。

2) 単位質量のふんからの環境負荷ガス発生原単位を推定するため、主要な処理方式である堆肥化過程からの発生について実験室レベルの試験装置で検討した。

その結果、VS 108.1kg、TN 4000gを含有豚ふん堆積物1 m³の堆肥化処理から発生するアンモニア発生量は400g～970gNH₃-N、メタンは0.6g～385gCH₄、亜酸化窒素については1.9g～19.2gN₂O-Nの範囲にあると考えられた。また、すべての環境負荷ガス発生が堆肥化の初期に集中し、全発生の9割以上が堆肥化初期の10日間で起こる事もわかった。量的に見れば、発生で最も問題視されるのはアンモニアであり、メタンと亜酸化窒素については好気的な発酵条件、すなわち通気量を十分に行うことで発生を大きく削減できると考えられた。この発生比率を元に堆肥化過程からの放出推定値として、発生はアンモニアが133～325gNH₃-N/頭、メタンが0.2～129gCH₄/頭および亜酸化窒素が0.7～6.4gN₂O-N/頭と試算された（図6-1）。

3) 家畜飼養系からの肥育全期間の放出量について検討した。

上記の污水处理および堆肥化からの各環境負荷ガス発生量に、豚の飼養試験で得られた豚舎からの発生量、アンモニア（NH₃-N）、亜酸化窒素（N₂O-N）およびメタン（CH₄）が豚1頭の肥育全期間中（8週間）に発生する量、それぞれ149、5.8および302g/頭を合計すると図

7-1 のようになる。すなわち、アンモニア ($\text{NH}_3\text{-N}$) 271~474g/頭、亜酸化窒素 ($\text{N}_2\text{O-N}$) 16.5~49.7g/頭、およびメタン (CH_4) 270~438g/頭、である。

アンモニアは、酸性雨の原因物質として欧州を中心に問題視されており、できうる限りの揮散防止策を取る必要がある。本試験の結果から、その発生は肥育期間中の豚舎からの放出量 (149g $\text{NH}_3\text{-N}$ /頭) と、ふんを主体とした固形分の堆肥化過程からの放出量 (133~325g $\text{NH}_3\text{-N}$ /頭) は、同程度である事が判った (図 6-1)。畜舎での発生は長期間に及ぶため、発生が始まる以前の段階でふん尿を分離して無機化が進行しにくいようにしたり、pHを下げてアンモニア発生を減少させるなどのふん尿管理が必要である。堆肥化では処理自体に影響しないよう、発生したアンモニアを物理的に捕集することが現実的と考えられる。

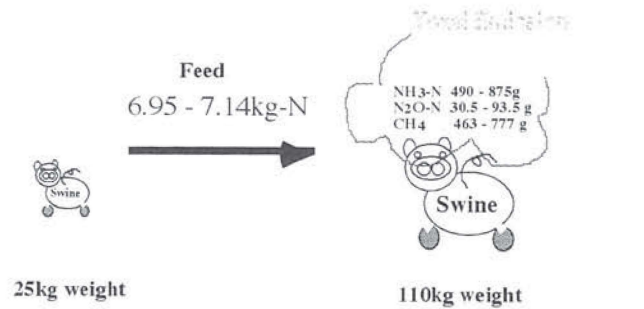
メタン発生については畜舎での発生が大半であり、畜体自体からの発生が大きく、発生量の抑制には飼料の効率化が有効と考えられる。また、ふんを好気的条件下で堆積し、堆肥化を行うこともメタンの発生管理には不可欠である。

また、亜酸化窒素については、大半が污水处理からの発生であるため、制御技術の一つとしての間欠曝気法の実処理施設への適用が急がれる。

各種産業活動の地球温暖化に与える影響を評価するため、温暖化に影響する環境負荷ガス (ここではメタンと亜酸化窒素) は最も発生量の多い二酸化炭素 (CO_2) の温暖化影響力に換算されて比較されている。GWP (地球温暖化能力) という概念¹⁴⁾ では、 CH_4 は CO_2 の26倍、 N_2O は270倍の影響力が見積もられている。

今回得られた豚 1 頭の肥育からの CO_2 発生量は8.65 kg程度であり、このうち肥育試験期間中の CO_2 発生量 5.6kgは実測、汚水浄化 (0.8kg) および堆肥化 (2.25kg) からの発生量は推定値である。これに対し、豚 1 頭の肥育からの総メタン発生量は、GWPに換算すると CO_2 7.0~11.4kgにあたる。すなわち発生メタンの温室効果は、同過程で発生した二酸化炭素に匹敵する。また、亜酸化窒素はGWPで換算すると、 CO_2 7.1~21.1kgと算出され、実際に排出された CO_2 の0.8~2.4倍もの温暖化効果が危惧される。養豚業からは、温暖化という物差しで測った場合、二酸化炭素よりも、おおむね2倍から3.5倍の大きい影響力を持つメタン、亜酸化窒素が発生するということである。

今回の試験結果のうち豚舎からの排出量は、デンマークでの飼養試験を元に行われた。デンマークにおいては



Total emissions during a swine breeding and its waste treatment (Case of Japan)

図 7-2 豚 1 頭の肥育過程から発生する環境負荷ガス (日本の飼養条件)

肥育豚の飼養はおおむね体重90kgまでであり、肥育期間中の日増体量は1.0kg/日程度であり、肥育期間も約56日間である。本試験の飼養もこの条件に沿って行われ、日増体量は約1.0kg/日という良好な肥育が行われた (表 3-1)。本論においては、日本でもSPF豚の増加により日増体量1.0kg/日に近づくことで飼育期間が短くなりつつある現状から、デンマークでの試験結果をそのまま飼育期間の負荷とした。

しかし現状の日本では肥育豚は110kgまで肥育する事が慣例であり、日増体量もやや低いために肥育期間はデンマークより長い傾向にある。このことから、日本の現状での肥育豚からの環境負荷ガス発生を量的に論じるには、日本の飼養環境にあわせて換算をする必要がある。

本試験の結果を日本の飼養環境下の肥育豚の発生量に換算する際 (図 7-2)、以下の2つの条件を仮定して算出した。

1) 肥育期間中の畜舎での環境負荷ガスの発生量は、肥育期間中の発生量の変動が日本の飼養環境下でも同様に起きるものの、肥育期間中の日平均発生量は変わらないものとした。換算は、日本飼養標準のデータから肥育期間96日 (本論では56日) を定め、本論の畜舎からの各環境負荷ガスの日平均発生量と肥育期間の積として算出した。

2) 堆肥化と污水处理からの環境負荷ガス発生については、ふん尿単位重量あたりの発生ガスは変わらないものとして算出した。上記と同様、日本飼養標準のデータから肥育期間96日 (本論では56日) に対する飼料摂取量を240kg (同126kg) と定め、ここから排出されるふん尿量を算定した。

このふん尿量に、本試験で得られた堆肥化および污水处理からの単位ふん尿処理における各環境負荷ガスの発生係数を掛け合わせて求めた。

以上の結果、図 7-2 のように環境負荷ガス量が算出さ

れた。

日本では、平成10年度畜産統計によれば約1000万頭の豚が飼養されている。今回得られた結果を係数として適用すると、この算定から、日本の養豚業から年間25～60万トンのCO₂に相当する温暖化ガス発生が計上される。この発生量は1990年における日本全体からの二酸化炭素発生推定量112,500万トン（未確定値、原著では炭素換算）¹⁹⁾に比べると0.1%程度の値である。

この中身として、

2) 日本の養豚業から年間0.46-0.78万トンのメタン発生量が計上される。この発生量は1998年の環境庁が算定した国内人為的メタン発生推定量136万トンに比べると、その約0.45%程度である。

3) 日本の養豚業から年間479～1470トンの亜酸化窒素発生量が計上される。この発生量は1998年の環境庁が算定した国内人為的亜酸化窒素発生推定量6.4万トンに比べると、その約1.5%程度である。

この値をどう評価するか現時点で難しい。しかし、豚だけでなく、搾乳牛、肉牛及び鶏のふん尿処理からの温室効果ガス発生も同様な発生源としての取り扱いが必要である。日本が地球温暖化防止条約を締結、温暖化ガス発生量を1990年レベルの6%削減を、2008年から2012年の間に達成する事を京都議定書で約束し、全産業活動での削減が求められている現状で無視できる数字ではない。

本試験で得られた結果は極めて基礎的な知見にすぎず、提案した算定値は多くの誤差を含んでいる。亜酸化窒素については、温暖化効果だけでなく、成層圏オゾン層の破壊にも関与している懸念も示唆されており、発生量総量の詳細な把握も必要であろう。さらに畜舎等における、臭気を含めた各種環境負荷ガスの揮散条件の検討²⁰⁾を進めると同時に、実際の処理現場での放出実態解明を急いでいるところである。

第8章 要約

本論文について

本論文は「豚のふん尿処理に伴う環境負荷ガスの発生」と題し、畜産系から発生する環境負荷のうち、未知部分の多い環境負荷ガス（アンモニア、メタン、亜酸化窒素）の発生について報告したものである。本論文では養豚経営の固液分離型のふん尿処理を想定し、各種ガス発生が顕著である畜舎内及びふん尿処理（污水处理、堆肥化处理）の各段階から発生する対象ガスの揮散量を把握するとともに、その発生要因を解析し、抑制手法を検討した。

本論文は以下の7つの章で構成される。

第1章、序論

第2章、試験装置と実験方法

第3章、豚舎からの環境負荷ガスの発生

第4章、污水处理過程からの環境負荷ガスの発生

第5章、堆肥化過程からの環境負荷ガスの発生

第6章、豚舎、污水处理、堆肥化处理からの環境負荷ガス放出原単位と放出抑制

第7章、総合討論

第8章、総括

各章の要旨

第1章では本試験研究の背景および目的について論じる。

現在、畜産経営においては家畜のふんや尿に起因する土壤汚染、水質汚濁や悪臭公害を防止するため、家畜排泄物の適切な処理・利用が模索されている。本来、家畜排泄物は肥料として農業利用されることが望ましい資源である。しかし化学肥料使用が主体となった現行の肥培体系のなかでは質的にも使いにくく、量的にも膨大であるために、利用されずに投棄される事例も少なくない。このため各畜産経営の飼養形態や畜舎構造等によって、また、地域環境によってさまざまな家畜排泄物の処理技術が導入されている。

畜産経営において導入される処理技術は、家畜排泄物を資源として利用するためのメタン発酵や堆肥化等技術と、家畜排泄物中の環境負荷原因物質を対象から除去するための污水浄化や悪臭除去等の浄化技術に大別できる。これらの技術は、それぞれ、目的生産物であるメタンや堆肥等の生成物質の質や生産量によって、あるいは汚濁物質や悪臭原因物質の除去効果で主に評価されている。経済活動である畜産業では、さらに経済性を考慮して、導入される排泄物処理システムが決定される。

昨今、人間活動の地球規模の気候変動に及ぼす影響が科学的根拠をもって指摘されるようになり始め、人為的に発生する物質の動態が国際的に議論の対象となっている。農業系からもアンモニアの揮散が酸性雨の原因として以前より指摘を受け、オランダでは発生抑制に行政が取り組みを始めている。これに加え、京都会議の議決を受け、地球温暖化原因物質として、メタンと亜酸化窒素の抑制への全産業的な取り組みが求められている。

これらの環境負荷ガスは、畜産からも発生する可能性があるが、こうした物質の発生量を定量的に測定した事例は少なく、総合的に発生抑制を目指した研究事例はほ

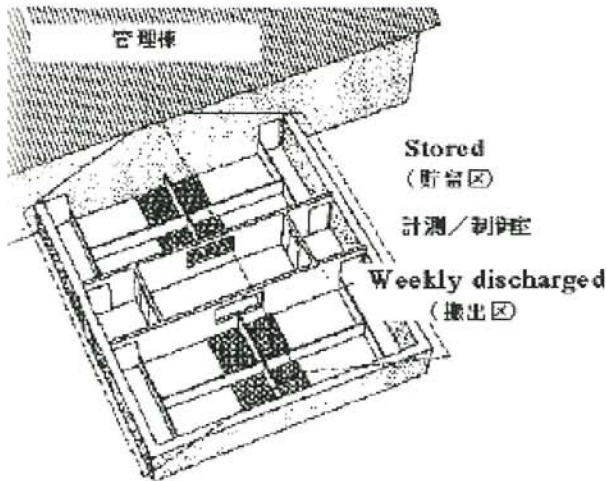


図 8-1 試験豚舎

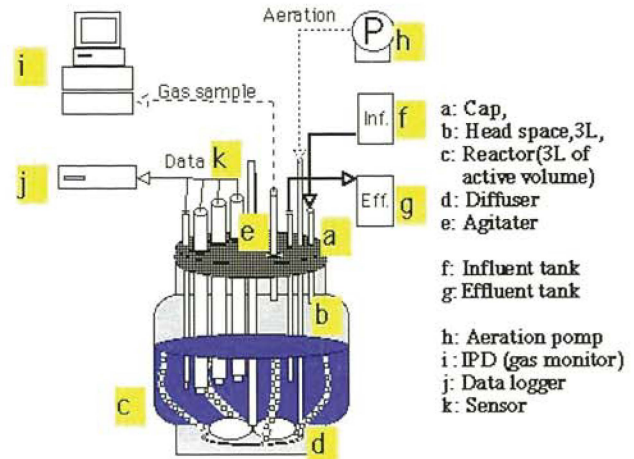


図 8-2 汚水試験装置

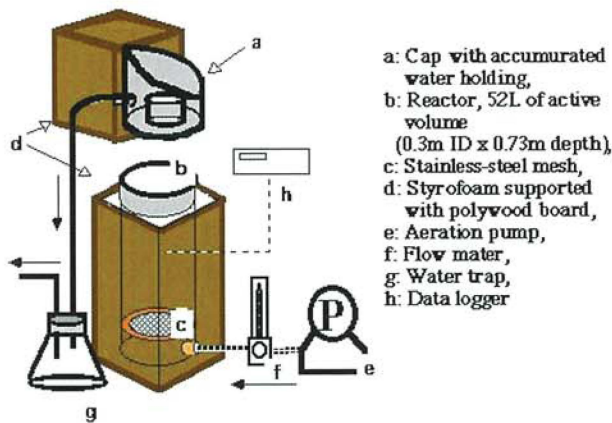


図 8-3 小型堆肥化試験装置

とんど見あたらない。

本研究は、特に専門化が進み自家保有の耕作地を持たない経営がほとんどとなり、家畜排泄物処理の緊急性がより高い養豚経営のふん尿処理を想定し、ここから発生するアンモニア、メタン及び亜酸化窒素について検討するものである。標準的な養豚経営の家畜排泄物処理工程に合わせ、a) 家畜排泄物が滞留される畜舎、これらが運び出されて固液分離された後の、b) 汚水浄化処理とc) 堆肥化処理からの各ガス発生量を定量的に測定し、単位家畜あたりのふん尿由来の発生総量を算定し、その抑制条件を検討した。

第2章、実験方法と試験装置

1) 試験装置

各過程からの環境負荷ガス発生量を算出するためには、吸気と排気的气体濃度差を測り、そのときの換気量(通気量)との積を算出する事で求めることができる。また、堆肥化あるいは汚水処理の処理の期間全体を評価

することで、処理期間全体からの単位ふん尿あたりからの発生量が算出される。

そこで試験装置は、

- 1) 吸気と排気が管理でき、濃度測定のためのサンプリングが容易であり、換気量が測定できる構造であること。
 - 2) 家畜生産、堆肥化や汚水浄化の1サイクルが完全に行うことができ、それぞれのシステム全期間が評価できること。
- 以上の要件を満たすものである必要がある。

a) 実験畜舎

床面積45.8m²で165m³の容積を持つ実験畜舎は強制換気システムで、吸気および排気を各1個のダクトで管理でき、ふん尿は部分すこの床面を通して地下のふん尿槽に貯留される。温風機と換気回数によって16～17度の室温に保ち、40頭の肥育豚の全肥育期間(20kg～90kg程度まで)飼養する。

b) 汚水浄化試験装置

有効容積10Lの回分式活性汚泥装置を用いた。試験槽は恒温水槽内に設置され、温度条件を制御できる。また、排気が採取できるように金属製のふたを設置した。

c) 家畜ふん堆肥化装置

小型堆肥化装置を用いた。本装置は有効容積52Lで、装置底部より任意の設定通気量で強制通気を行う。装置は槽を断熱材で覆い、堆肥化で発生する熱による品温上昇(70℃程度)を再現し、4週間程度で完熟した堆肥を製造することができる。

3) 試験設計と手順

- a) 豚舎からのアンモニア、メタンおよび亜酸化窒素の発生量測定試験

試験はデンマーク農業研究所 Bygholm 試験地の前述の実験畜舎で行われた。試験期間は1996年9月から11月の8週間、肥育豚の標準的な飼養全期間を検討対象とした。実験畜舎を温風機と換気回数によって16～17度の室温に保ち、各室40頭の肥育豚を飼養してアンモニア、メタンおよび亜酸化窒素の発生総量を測定した。畜舎内貯留槽のふん尿を飼養の全期間貯留したままの区 (Reference, 貯留区) と毎週搬出する区 (Experimental, 搬出区) の比較を行い、ふん尿の貯留方法の影響について検討した。

b) 汚水浄化処理からのアンモニア、メタンおよび亜酸化窒素の発生量測定試験

汚水処理試験は、通常の畜産農家で行われている回分式活性汚泥処理の条件に準じて行われた。BOD容積負荷 $0.5\text{kgm}^{-3}\text{day}^{-1}$ とし、HRT (水理学的滞留時間) を3日に定め、水温 5°C と 10°C の条件で行った。投入汚水は豚のふんに尿を混ぜた汚水を作成し、試験に供した。一般に行われている通気管理 (連続曝気) のもとで、BOD 約 1500mgL^{-1} 、T-Nを約 200mgL^{-1} と設定し、環境負荷ガス発生に及ぼす温度条件の影響を

表 8-1 分析手法一覧

Analytical Methods of This Experiments

Experiment	Period	Materials	Sampling	Frequency	Items	Method	References
Gas emission from pig units	All	Gas	B.G and Exhaust ducts of both pig units	10 min. interval	Temp.	Pt sensors	APHA
					Ventilation rate	full size free-running impeller	DS 6039 Pedersen & Strom
					Humidity, CO ₂ , NH ₃ , CH ₄ , N ₂ O	Infrared Photo-acoustic Detection	Rom,H.B
		Liquid	Slurry stored in pits (3 or 45 cm below surface)	5 min. interval	pH	pH electrode	APHA
					ORP	Combination redox electrode	
					Temp.	Pt sensors	
			Slurry stored in the pits	Weekly	Production	Depth of slurry in pit	Rom,H.B.
					D.M	Drying	APHA
					TN	Kj-N+NOx-N	
			Pig units	Weekly	NH ₄ -N	Bremner	Rom,H.B.
					Consumed water	Service meter	
		Solid	Feed dispenser	2times	TN	Kj-N+NOx-N	APHA
				Weekly	Consumption	weight	Rom,H.B.
		Others	Pig units	Weekly	Pig weight	weight	Rom,H.B.
Gas emission from wastewater purification	All	Gas	Inlet and outlet air	10 min. interval	Temp.	Pt sensors	APHA
					flow late	Flow meter	Sewage analysis manual
					pH	pH electrode	APHA
		Liquid	Influent and effluent	2times/W	Temp.	Pt sensors	
					NH ₄ -N, NOx-N, PO ₄ -P	Ion Chromatograph	
					TN,TP	Colorimetric Method	Sewage analysis manual
		Solid	Activated sludge	Weekly	Sludge conc.	Dry and weight	
					TN,TP	Colorimetric Method	
	At the time gas evaluation periods	Gas	Inlet and outlet air	10 min. interval	Temp.	Pt sensors	APHA
				7-18 times/day	Flow late	Flow meter	Sewage analysis manual
					NH ₃ ,NO	Indicator tube	Maloder analysis manual
					CH ₄	FID-GC	Soil Environment Analysis Method
					N ₂ O	ECD-GC	
					pH	pH electrode	
		Liquid	Influent and effluent	7-18 times/day	Temp.	Pt sensors	APHA
					NH ₄ -N,NOx-N, PO ₄ -P	Ion Chromatograph	
					TN, TP	Colorimetric Method	
		Solid	Activated sludge	Start and End of Experiments	Sludge conc.	Dry and weight	Sewage analysis manual 1996
					TN, TP	Colorimetric Method	
Gas emission from composting	All	Gas	Inlet and outlet air	30 min. interval	Temp.	Thermocouples	Soil Environment Analysis Method
				Daily	Flow late	Flow meter	Sewage analysis manual
					NH ₃ , NO	Indicator tube	Maloder analysis manual
					CH ₄	FID-GC	Soil Environment Analysis Method
					N ₂ O	ECD-GC	
					pH	pH electrode	
		Liquid	Accumulated water	Weekly	NH ₄ -N, NOx-N,	Bremner	Sewage analysis manual
					TN	Colorimetric Method	
		Solid	Mixture of composting materials	Weekly	Weight	Weight	Soil Environment Analysis Method
					D.M	Dry and weight	
					pH	pH electrode	
					TN	Kj-N+NOx-N	
					NH ₄ -N, NOx-N,	Bremner	
				30 min. interval	Temp.	Thermocouples	Soil Environment Analysis Method

検討した。また、我々の研究グループが以前報告²⁹⁾した間欠式曝気を従来法と比較した。それぞれの方式における各環境負荷ガス発生を経時的に測定するとともに、発生総量を算定した。

c) 家畜ふん堆肥化処理からのアンモニア、メタンおよび亜酸化窒素の発生量 測定試験

新鮮豚ふんに含水率が65%程度になるように2cm角のダンボール裁断片を混合、通気量を現実の堆肥化施設で行われている範囲($20\sim 100\text{Lm}^{-3}\text{min}^{-1}$)で変化させ、その影響について検討した。さらに、堆肥化を速やかに進行させるための既往技術である戻し堆肥を評価するため、完熟堆肥を豚ふん重量の10%添加し各種環境負荷ガスの発生量の違いを検討した。また、堆肥化過程で堆積混合物の性状が不均一にならぬように、週に一回切り返しを行った。その際、堆積混合物を採取して堆肥化進行状況の把握を行った。

3) 分析方法

3つの過程で発生するガスについて、ほぼ共通した分析手法を用いている。

- a) 通気量、換気量及び温度の測定
- b) 気体成分に関する測定
- c) 液状試料に関する測定
- d) 固形試料に関する分析
- e) その他の測定

分析法について以下の表 8-1 にまとめた。

第3章、豚舎からの環境負荷ガスの発生

密閉された豚舎からの給気中と排気中のアンモニア、メタンおよび亜酸化窒素の濃度($\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$)と各試験区の換気量($\text{m}^3\cdot\text{h}^{-1}$)の5分間の平均測定値から、各気体の5分間の放出量を次式から算出した。

$$\begin{aligned} \text{放出量 } E (\text{mg}/5\text{min}) = \\ (\text{排気中の濃度 } (\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}) - \text{給気中の濃度 } (\text{mg}\cdot\text{m}^{-3})) \\ \times 5/60 \times \text{換気量 } (\text{m}^3\cdot\text{hour}^{-1}) \end{aligned}$$

この放出量(E)を積算して1時間当たり放出量($\text{mg}\cdot\text{h}^{-1}$)を算出したところ、各環境負荷ガスの放出量は飼育期間で変化(期間変動)し、また時刻によっても周期的に変動(日間変動)していることが判った。

1) 環境負荷ガスの期間変動

全ての環境負荷ガスで、ふん尿貯留区に比べて1週間に1度の搬出区の放出量は有意に低かった(アンモニア、亜酸化窒素は $p < 5\%$ 、メタンは $p < 1\%$)。アンモニアの放出量は搬出区、貯留区ともに1週目($1.0\text{g}\cdot\text{pig}^{-1}\cdot\text{day}^{-1}$)から3週目まで増加して $3.5\text{g}\cdot\text{pig}^{-1}\cdot\text{day}^{-1}$ に達

し、それ以降は一定値で推移した。メタンの放出量はアンモニア同様に3週目まで増加した($2.0\text{g}\cdot\text{pig}^{-1}\cdot\text{day}^{-1}$ から $8.0\text{g}\cdot\text{pig}^{-1}\cdot\text{day}^{-1}$)が4週目以降は減少に転じた。亜酸化窒素の放出量は5週目までは低く($0.1\text{g}\cdot\text{pig}^{-1}\cdot\text{day}^{-1}$)、6週目に大幅に増加した。肥育期間の進行と共に畜体が大きくなり、また排泄物量も増加するため、環境負荷ガスの発生量が増加するのは当然と言える。しかし、その増加は、単に排泄物量の増加に比例するものではなかった。

亜酸化窒素の発生量の増加が5週間目まで低かったのは、発生の主体と想定される硝化に関わる微生物の増殖が遅いため、時間的に遅れがあったものと考えられる。二酸化炭素発生量増加が見られず、メタンの発生量が4週目以降に低下したのは肥育豚の運動量の低下が要因にはあげられるが、さらに検討が必要であろう。

2) 環境負荷ガスの日間変動

環境負荷ガスの発生は明らかな日間変動を示した。データは肥育期間の各週100時間以上の1時間当たり発生量を時刻別に集計・積算し、各時刻の平均発生量を算出した。集計データは測定の曜日、時期に関してほぼ均一であり、時刻別の発生量とこれらの要因との相関係数はほとんどない($r^2 = 0.005$)。

環境温度をほぼ一定(17°C)に調節した畜舎での試験にも関わらず搬出区、貯留区ともにすべての環境負荷ガス排出量が日中高く、夜間に低い傾向が明らかであった。また、給餌が行われる10~11時頃から急上昇、排泄行動時の13~14時に発生ピークがみられることから、家畜の活動との関連が深いことが示唆された。

第4章、汚水処理過程からの環境負荷ガスの発生

実際の活性汚泥処理と同様の処理条件下において、 5°C 、 20°C の両温度条件、連続、間欠曝気両曝気条件の全ての試験区における処理水が畜産排水に対する当面の規制値($\text{BOD } 160\text{mgL}^{-1}$, $\text{Total N } 140\text{mgL}^{-1}$)を下回る結果であった。しかし従来法と間欠曝気法を比較してみると、間欠曝気法の処理効率は高く、窒素の除去率が 5°C の条件でも75%と好結果であった。間欠曝気法により窒素が効率よく硝化・脱窒した事によると考えられた。

汚水処理過程から発生する環境負荷ガスについては、アンモニアおよびメタンに関しては、全ての試験区で放出は極めて低く、検出限界に近いものであった。アンモニア発生量は極めて微量であり、メタンについても、発生量は投入汚水中の全有機体炭素($\text{TOC } 950\text{mgL}^{-1}$)の0.2~0.05%に止まる。十分な曝気処理が行われる活性汚

泥処理では、酸化条件下で強く活性が阻害されるメタン生成菌の生育は限定的で、したがって生成されるメタンもきわめて少ないと思われる。この結果は、有効な汚水浄化処理が行われる限り、浄化処理過程からのアンモニアとメタンの発生は少ないと言える。

しかし、亜酸化窒素の放出が全ての試験区から確認され、20℃で従来の連続曝気条件では、処理窒素の約5%が亜酸化窒素として放出されており、その発生は $200 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-3}$ を越える値も観測された。家畜尿汚水は窒素濃度が極端に高く、処理水は硝酸濃度が高くなる。この条件下では脱窒に必要な水素供与体（有機物）が比較的不足することが亜酸化窒素の発生要因のひとつと考えられる。

亜酸化窒素の発生は特に連続曝気区で汚水投入2時間後の曝気時に顕著であった。連続曝気で水温が低い条件（5℃）では、窒素処理効率自体も悪いこともあり、亜酸化窒素の汚水1L処理あたり発生総量は4.7mgと低い、発生量の変動については20℃の場合と同様であった。

間欠曝気区では、亜酸化窒素の発生総量は温度条件によらず汚水1L処理あたり0.1mg程度であり、投入汚水中の総窒素の0.04%であった。この排出量は従来法と比較すると、1/50～1/100であった。間欠曝気法による処理では硝酸の生成と脱窒がバランスよく進行することで、浄化効率が高いだけでなく、亜酸化窒素発生も抑制されていると考えられる。

第5章、堆肥化過程からの環境負荷ガスの発生

堆肥化過程において測定されたアンモニア、メタンおよび亜酸化窒素揮散の一般的な消長を見ると、堆肥化初期の約10日間に極めて多量のアンモニア揮散が見られる。しかしこの発生のピークは堆積後約24時間後であり、その後減少するが、次の切り返し後24時間にも再度増大して急速に減少した。メタンと亜酸化窒素についても、堆肥化開始後7～10日間における発生が高い。

堆肥化終了時までの各気体揮散総量の80～90%が堆肥化初期の10日間に揮散していることは共通するが、1) メタンの発生は堆肥化開始日に集中する、2) 亜酸化窒素は堆肥化開始日の発生が最大であるが、その後も発生が継続する、また3) アンモニアは堆肥化開始から10日間は同レベルの高い発生が継続し、その後は発生が急速に減少する、と特徴的になっていた。各気体で見られるこの特徴は今回の通気量の範囲（ $19.3 \sim 96 \text{ Lm}^{-3} \text{ min}^{-1}$ ）では変わることなく観測され、また戻し堆肥の添加によってもほとんど変わることはなかった。

堆肥化過程において発生するアンモニア、メタンおよび亜酸化窒素揮散総量と通気量の関係はどの気体についても相関が高かった。通気量が $19.3 \text{ Lm}^{-3} \text{ min}^{-1}$ の場合が最も亜酸化窒素発生が高く、通気量の増大に従って発生量は減少している。通気量 $19.3 \text{ Lm}^{-3} \text{ min}^{-1}$ と $57.6 \text{ Lm}^{-3} \text{ min}^{-1}$ を比較すると $57.6 \text{ Lm}^{-3} \text{ min}^{-1}$ の場合では亜酸化窒素の発生量は $19.3 \text{ Lm}^{-3} \text{ min}^{-1}$ のその1/5～1/20と低く抑えられていた。部分的にせよ嫌気的条件が必要とされるメタンと亜酸化窒素の発生は、通気量を上げることによって抑制可能と考えられた。しかしアンモニアの場合、通気量を上げることによって揮散総量が増大した。当初の堆積物中の窒素含有量（約 $4000 \text{ g} \cdot \text{m}^{-3}$ ）の10～20%に当たる400～970gの窒素が堆肥化過程でアンモニアとして揮散した。

また、完熟堆肥の添加は堆肥化初期に若干の反応促進効果がありメタンの発生に抑制的に働く事が低い通気量条件下で観察されたが、アンモニアの発生には影響なく、亜酸化窒素については、逆に発生の増大が見られた。これは完熟堆肥中に含有される NO_x のためと思われる。

第6章、豚舎、汚水処理、堆肥化処理からの環境負荷ガス放出原単位と放出抑制

豚舎、汚水処理、堆肥化処理からの試験結果から、アンモニア、亜酸化窒素およびメタンが豚1頭の肥育全期間中（8週間）に発生する量を試算した。すなわち、肥育期間の畜舎からの発生、および8週間に発生する家畜のふんと尿を分離し、固形分を堆肥化、尿汚水は活性

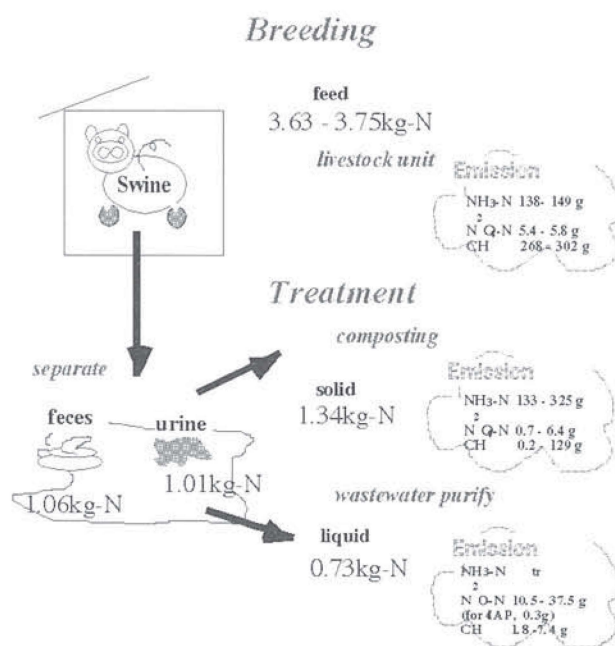


図8-4 豚の飼養系からの環境負荷ガスの発生

汚泥処理した場合に放出される各種環境負荷ガスの揮散総量を、本試験の結果を元に算定した結果を図8-4に示す。

筆者らは豚1頭が生産される間に発生する各環境負荷ガス総量を算出することを試みた。発生が起これると思われるプロセスを豚舎飼養、汚水浄化処理および堆肥化処理の3つに分けて検討した。

1) 強制換気システムを備えた飼養試験室で温風機と換気量の調整によって16~17度の室温に保ち、肥育豚の30kgから90kg程度までの8週間全肥育期間についてアンモニア、メタンおよび亜酸化窒素の発生量を検討した(第3章)。試験結果から、アンモニア(NH₃)、亜酸化窒素(N₂O)およびメタン(CH₄)が豚1頭の肥育全期間中(8週間)に発生する量は、それぞれ181、9.1および302g/頭(貯留区)であり、ふん尿の搬出を毎週行うことで、168、8.4および268g/頭(搬出区)に、僅かながら削減できることが判った。本論文では現行で多く行われているふん尿管理法である貯留区の値を原単位とする。この排出量は、排出されたふん尿中の全窒素に対する比率で表すと、アンモニアは7.4%、亜酸化窒素は0.29%にあたる。排出されたふん尿中の有機物(VS)に対するメタン排出量は0.24%になった。

2) 単位質量の豚舎汚水からの環境負荷ガス発生原単位を推定するため、主要な処理方式である汚水処理過程からの発生について実験室レベルの試験装置で検討した。その結果、TOC950g、T-N207gを含む豚ふん尿汚水1m³の浄化処理から発生するアンモニアは検出限界(1mg・m⁻³)以下、メタンは0.5~2.0g、亜酸化窒素は3.0~10.6g(連続曝気)と試算された。また間欠曝気に変更することで、浄化処理から発生する亜酸化窒素は0.06~0.07gに減少できることが確認された。この発生比率を元に豚ふん尿汚水浄化処理からの放出推定値として、アンモニアについては検出限界以下、メタンについては1.8~7.4g/頭、亜酸化窒素については10.7g~37.5g/頭の発生が試算された(図8-4)。

3) 単位質量のふんからの環境負荷ガス発生原単位を推定するため、主要な処理方式である堆肥化過程からの発生について実験室レベルの試験装置で検討した。

その結果、VS 108.1kg、TN 4000gを含有豚ふん堆積物1m³の堆肥化処理から発生するアンモニア発生量は400g~970g、メタンは0.6g~385g、亜酸化窒素については1.9g~19.2gの範囲にあると考えられた。また、すべての環境負荷ガス発生が堆肥化の初期に集中し、全発生

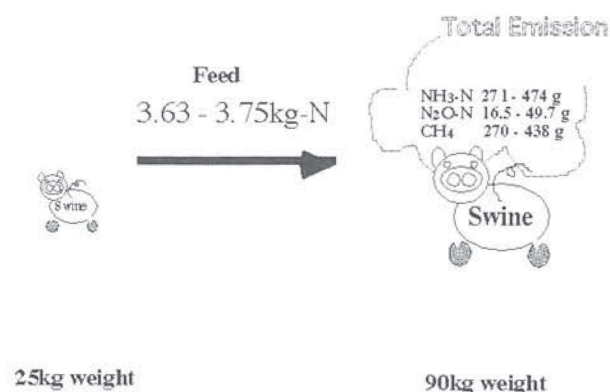


図8-5 豚1頭の飼養からの環境負荷ガス総発生量 (日本の飼養条件)

の9割以上が堆肥化初期の10日間で起こる事もわかった。

養豚業の全体からのこれら環境負荷ガスを排出量で見れば、発生で最も問題視されるのアンモニアであり、メタンと亜酸化窒素については好気的な発酵条件、すなわち通気量を十分に行うことで発生を大きく削減できると考えられた。この発生比率を元に堆肥化過程からの放出推定値として、発生はアンモニアが133~325g/頭、メタンが0.2~129g/頭および亜酸化窒素が0.7~6.4g/頭と試算された。

アンモニア(NH₃-N)は、酸性雨の原因物質として欧州を中心に問題視されており、できうる限りの揮散防止策を取る必要がある。本試験の結果から、その発生は肥育期間中の豚舎からの放出量(138~149g/頭)と、ふんを主体とした固形分の堆肥化過程からの放出量(133~325g/頭)は、同程度である事が判った(図8-4)。畜舎での発生は長期間に及ぶため、発生が始まる以前の段階でふん尿を分離して無機化が進行しにくいようにする等のアンモニアにしないふん尿管理が必要であり、堆肥化では処理自体に影響しないよう、発生したアンモニアを物理的に捕集することが現実的と考えられる。

メタン発生については畜舎での発生が大半であり、畜体自体からの発生が大きく、発生量の抑制には飼料の効率化が有効と考えられる。また、ふんを好気的条件下で堆積し、堆肥化を行うこともメタンの発生管理には不可欠である。

また、亜酸化窒素については、大半が汚水処理からの発生であるため、制御技術の一つとしての間欠曝気法の実処理施設への適用が急がれる。

第7章 総括

家畜飼養系からの肥育全期間の放出量について検討し

た。

汚水処理および堆肥化からの各環境負荷ガス発生量に、豚の飼養試験で得られた豚舎からの発生量を合計し、日本の現在の飼養環境を勘案して発生量を換算すると図8-5のようになる。

各種産業活動の地球温暖化に与える影響を評価するため、温暖化に影響する環境負荷ガス（ここではメタンと亜酸化窒素）は最も発生量の多い二酸化炭素（CO₂）の温暖化影響力に換算されて比較されている。GWP（地球温暖化能力）という概念¹⁴⁾では、CH₄はCO₂の26倍、N₂Oは270倍の影響力が見積もられている。

今回得られた豚1頭の肥育からのCO₂発生量は8.65kg程度であり、このうち肥育試験期間中のCO₂発生量5.6kgは実測、汚水浄化（0.8kg）および堆肥化（2.25kg）からの発生量は推定値である。これに対し、豚1頭の肥育からの総メタン発生量は、GWPに換算するとCO₂7.0～11.4kgにあたる。すなわち発生メタンの温室効果は、同過程で発生した二酸化炭素に匹敵する。また、亜酸化窒素はGWPで換算すると、CO₂7.1～21.1kgと算出され、実際に排出されたCO₂の0.8～2.4倍もの温暖化効果が危惧される。

養豚業からは、温暖化という物差しで測った場合、二酸化炭素よりも、おおむね2倍から3.5倍の大きい影響力を持つメタン、亜酸化窒素が発生するということである。

日本では、平成10年度畜産統計によれば約1000万頭の豚が飼養されている。今回得られた結果を係数として適用すると、下記のような計算が成り立つ。

1) 日本の養豚業から年間25～60万トンのCO₂発生に相当する温暖化ガス発生が計上される。この発生量は1990年における日本全体からの二酸化炭素発生推定量112,500万トン（未確定値、原著では炭素換算¹⁴⁾）に比べると0.1%程度の値である。

この中身として、

2) 日本の養豚業から年間0.46～0.78万トンのメタン発生量が計上される。この発生量は1998年の環境庁が算定した国内人為的メタン発生推定量136万トンに比べると、その約0.45%程度である。

3) 日本の養豚業から年間479～1470トンの亜酸化窒素発生量が計上される。この発生量は1998年の環境庁が算定した国内人為的亜酸化窒素発生推定量6.4万トンに比べると、その約1.5%程度である。

この値をどう評価するか現時点で難しい。

参考文献

- 1) APHA (1992). Standard Methods for the Examination of Water and Wastewater, 17th edition. American Public Health Association, Washington D.C.
- 2) Bitton, G. (1994) Wastewater Microbiology, 235-238. Wiley-LISS.
- 3) Bremner, J. M. (1965) Total nitrogen, In method of soil analysis. Am. Soc. Agron. Inc., 1149-1178
- 4) Burton C H, Sneath R W, Farrent J W. (1993) Emission of nitrogen oxide gases during aerobic treatment of animal slurries. Bioresorce Technology, 45, 233-235.
- 5) Czepiel, P, Douglas, E., Harriss, R. & Crill, P. (1996) Measurements of N₂O from composted organic wastes. Environ. Sci. & Technol. 30, 2519-2525.
- 6) Dewes, T. (1995) Nitrogen losses from manure heaps. Biol. Agric. Hort. 11, 309-317.
- 7) Danish Agricultural Advisory Centre. (1998) Ecological Farming in Denmark. 1998. Aarhus, Denmark : The Danish Agricultural Advisory Centre. 12 pp.
- 8) DS-6039, (1983) Danish standard on ventilation systems for livestock buildings. Copenhagen, Dansk Standardiseringsraad, Copenhagen.
- 9) 下水汚泥資源利用協議会編（1996）：下水汚泥分析方法
- 10) 羽賀清典（1998）：畜産環境保全論，養賢堂，押田敏夫，柿市徳英，羽賀清典共編，56-60
- 11) Hartung, J. and Phillips, V.R. (1994) Control of gaseous emissions from livestock buildings and waste stores. J. Agric. Res. 57, 173-189.
- 12) Hellmann, B., Zelles, L., Palojarvi, A. & Bai, Q. (1997) Emission of climate-relevant trace gases and succession of microbial communities during open-windrow composting. Appl. Environ. Microbiol. 63, 1011-1018.
- 13) Husted, S. (1994) Seasonal variation in methane emission from stored slurry and solid manures. J. Environ. Qual. 23, 585-592
- 14) International Panel on Climate Change (IPCC) (1994) Climate Change 1994 -Radiative Forcing of Climate Change and Evaluation of the IPCC IS92 Emission Scenarios, Cambridge University Press, UK.
- 15) 環境技術研究会編（1986）：し尿処理ガイドブック，

環境技術研究会

- 16) 環境庁 (1972) : 特定悪臭物質の測定方法 (昭和47年 5 月30日環境庁告示, 平成 8 年 2 月22日改正)
- 17) 環境庁大気保全局大気生活環境室監修 (1990) : 悪臭物質簡易測定マニュアル (新訂ハンドブック悪臭防止法), きょうせい (株)
- 18) Kirchmann, H. & Witter, E. (1989) Ammonia volatilization during aerobic and anaerobic manure decomposition. *Plant Soil*. 115, 35-41.
- 19) Krahel, J., Munack, A., Luther, W., Hopf, H. and Schroder, O. (1995) Determination of trace gases from animal houses via FT-Infrared Spectroscopy. *VDI Berichte*, 1211, 215-218.
- 20) Kuroda, K., Osada T., Yonaga M., Kanematu A., Nitta T., Mouri S., and Kojima T. (1996) Emission of malodorous compounds and greenhouse gases from composting swine feces. *Bioresouce Tech.*, 56, 265-271
- 21) Lammers, P. S., Romer, G. & Boeker, P. (1997) Amount and limitation of ammonia emission from stored solid manure. In Voermans J.A.M. & Monteny G. J. (eds) *Ammonia and Odour control from animal production facilities*. Proceedings distributed by NVTL Rosmalen, NL., Pp 43-48
- 22) 陽 捷行 (1994) 大気の亜酸化窒素の変動と畜産, 地球温暖化と我が国の畜産第3集, 畜産技術協会
- 23) Murakami, T., Owa, N. and Kumazawa, K. (1987) The effect of soil conditions and nitrogen form on N₂O evolution by denitrification. *Soil Sci. Plant Nutr.*, 33.1, 35-42.
- 24) Mannebeck, H., and J. Oldenburg, (1990) Comparison of the effects of different systems on ammonia emissions. Proceedings of a seminar held in Silsoe, United Kingdom, 26-28 March 1990, 42-49.
- 25) Murakami, T., and Kumazawa, K. (1987) Measurement of denitrification products in soil by the acetylene inhibition method. *Soil Sci. Plant Nutr.*, 33.2, 225-235.
- 26) 日本土壤肥料学会監修 (1997) : 土壤環境分析法, 博友社
- 27) 農林水産省統計情報部 (1998) : 環境保全型農業調査畜産部門調査結果の概要 (平成 9 年 2 月調査)
- 28) Oldenburg, J. (1992) Ammonia emission from animal houses. *Baltic Sea Environment Proceedings No.44*, Nitrogen and Agricultural International Workshop, Schleswig, Germany, 1991.
- 29) Osada T., Haga K. and Harada Y. (1991) Removal of Nitrogen and Phosphorus from Swine Wastewater by the Activated Sludge Units with the Intermittent Aeration Process. *Water Research* 25, pp1377-1388
- 30) Osada, T., Kuroda, K. and Yonaga, M. (1995) Reducing nitrous oxide gas emissions from fill-and-draw type activated sludge process. *Water Research* 29, 1607-1608.
- 31) Osada T. (1997) Biological Wastewater Purification for Environmentally Friendly Livestock Farming. *International Workshop on Environmentally Friendly Management of Farm Animal Waste* pp 85-89 (Sapporo)
- 32) Osada T., Hans Benny Rom and Preben Dahl (1998) Continuous Measurement of Nitrous Oxide and Methane Emission in Pig Units by Infrared Photoacoustic Detection, *Transaction of the ASAE*. Vol 41, pp1109-1114.
- 33) Osada T., Kuroda K., and Yonaga M. (2000) Nitrous oxide, Methane and ammonia emissions from composting process of swine waste. *The Japanese Society of Waste Management Experts Vol.2 No.1* p51-56.
- 34) Osada T, Sven G. Sommer, Preben Dahl and Hans Benny Rom (2000) Turnover of nutrients, gaseous emission and succession of microbial communities during composting of cattle deep litter., *Acta. Agricultura Scandinavia* (submitted)
- 35) Ouwkerk, E.N.J. van and Pedersen, S. (1994) Application of the carbon dioxide mass balance method to evaluate ventilation rate in livestock buildings. *Proceedings of the 12th World Congress on Agricultural Engineering.*, Milan, 1994, Vol.1, 516-529.
- 36) Pedersen, S. and Strom, J.S. (1995) Performance testing of complete ventilation units. *Applied Engineering in Agriculture*, 11, 131-136.
- 37) Petersen, S. O., Lind, A.-M. & Sommer, S. G. (1998) Nitrogen and organic matter losses during storage of cattle and pig manure. *J. Agric. Sci., Camb.* 130, p69-79.
- 38) Witter, E. & Lopez-Real, J. (1988) Nitrogen losses during the composting of sewage sludge, and the effectiveness of clay soil, zeolite, and compost in

- adsorbing the volatilized ammonia. *Biological. Wastes*, 23, p279-294.
- 39) Phillips, V.R., Holden, M.R., White, R.P., Sneath, R.W., Demmers, T.G.M. and Wathes, C.M. (1995) Measuring and reducing gaseous and particulate air pollution from UK livestock buildings, *Proceedings of the 7th International Symposium on Agricultural and Food Processing Waste.*, ISAFPW95, Chicago, Illinois, 1995, 241-251.
- 40) Rom, H.B. (1995) Ammonia emission from pig confinement buildings. System analysis and measuring methods. Ph.D. Thesis. The Royal Veterinary and Agricultural University, Copenhagen, Denmark and Danish Institute of Animal Science, Research Centre Bygholm, Horsens.
- 41) Ryden, J.C., Whitehead, D.C., Locker, D.R., Thompson, R.B., Skinner, J.H. and Garwood, E.A. (1987) Ammonia emission from grassland and livestock production system in U.K. *Environ. Pollut.* 48, 173-184.
- 42) Safley, L.M. Jr. and Westerman, P.W., (1988) Biogas production from anaerobic lagoons. *Biol. Wastes* 23, 181-193.
- 43) 齊藤守 (1988) : 肥育豚および妊娠豚におけるメタンの排出量, 日本畜産学会報59 (9), 773-778
- 44) Sibbesen, E. & Lind, A.-M. (1993) Loss of nitrous oxide from animal manure in dungheaps. *Acta Agric. Scand, Sect. B, Soil Plant Sci.*, 43, 16-20.
- 45) Smith, C.J. and W.H. Patrick Jr. (1983) Nitrous oxide emission as affected by alternate anaerobic and aerobic condition from soil suspensions enriched with ammonium sulfate. *Soil Biol. Biochem.*, 15, 693-697
- 46) Sommer, S.G. & Dahl, P. (1999) Nutrient and carbon balance during composting of deep litter. *J. Agric. Engng. Res.* 74, 145-153.
- 47) Sommer, S.G., Sibbesen, E., Nielsen, T., Schjoerring, J.K. and Olsen, J.E., (1996) A passive flux sampler for measuring ammonia volatilization from manure storages facilities. *J. Environ. Qual.*, 25, 241-247.
- 48) 社団法人日本下水道協会編 (1997) : 下水試験方法
- 49) 社団法人日本水環境学会編 (1994) : 窒素, リン規制の動向と排水処理技術
- 50) Thorbek, G. (1969) National Institute of Animal Science, Report No.373, pp.0-46, Landhusholdningsselskabets Forlag.
- 51) 築城幹典・原田靖生 (1997) : 我が国における家畜排泄物発生の実体と今後の課題, 環境保全と新しい畜産, 農林水産技術情報協会, 15-29
- 52) 渡辺征夫 (1994) : 高負荷し尿処理施設から排出される亜酸化窒素, 大気汚染学会誌, 29 (4) 225-233
- 53) Yagi, K. and Minami, K. (1991) Emission and production of methane in the paddy fields of Japan. *JARQ* 25, 163-171.
- 54) Yamamoto, K. (1995) Emission of trace gases contributing greenhouse effect from grassland. (Global environment research of Japan, Final report for project completed in 1994) 55-63, Environment Agency Government of Japan.
- 55) 財団法人畜産環境整備リース協会編 (1995) : 家畜ふん尿処理システム経済性等調査分析報告書ー養豚経営についてー
- 56) Zheng H., Hanaki K. and Matuo T. (1994) Production of nitrous oxide gas during nitrification of wastewater, *Water Science and Technology*, 30 : 133-141

Abstract

Background

Unsuitable handling and/or treatment of livestock manure has caused an emission of harmful gases from livestock production systems (IPCC, 1994). A number of studies have evaluated ammonia (NH_3) emission from livestock products (Rom, 1995, Ryden et al., 1987, Hartung and Phillips, 1994, Sommer et al. 1996), and it has proved necessary to find solutions to the problems. In recent studies it was suspected that livestock manure contributes significantly to the emission of methane (CH_4) and nitrous oxide (N_2O), which are important greenhouse gases. Some efforts have been made to quantify the emissions from livestock manure stores (Safley and Westerman, 1988, Husted, 1994) and from treatment systems (Yamamoto, 1995, Osada et al., 1995). The data collected have been restricted to a few hours or days, and therefore, it has not been possible to define the emission rates from manure.

The purpose of this study is to evaluate CH_4 , N_2O and NH_3 emission rates from the swine wastetreatment all of its fattening periods.

For this purpose, I had studied three waste treatment process;

- 1) Emission from the waste in the pig burn (unit),
 - 2) Emission from the wastewater pulification for liquid part of swine waste
- and
- 3) Emission from the composting for solid part (faces) of swine waste.

Emission from the pig burn

Emission of CO_2 , NH_3 , N_2O and CH_4 from pig units have been investigated continuously by use of Infrared Photoacoustic Detection (IPD). The emission of all gases varied during the growth of the pigs. For example, the highest value of CH_4 emission rate was four times as high as the lowest one during the experimental period. In addition to this, all gas emissions have a typical diurnal fluctuation. The gas emission value observed at the peak hours (1:00 - 2:00 P.M.) was twice as high as that observed around 6:00 A.M., although the room temperature was kept at around at 17°C . Those variations may

explain why the results presented by other authors differed so much. The CO_2 , NH_3 , N_2O and CH_4 emissions from pig units during a full fattening period of 8 weeks were estimated at 5540, 181, 9.1 and 302 g/pig (reference units) and those were reduced slightly at 5440, 168, 8.4 and 268 g/pig (experimental units), respectively with weekly discharge of slurry. All CH_4 and N_2O data from IPD were need to be recalibrated for reference purposes by the GC method, as the IPD tended to overestimate both the CH_4 and the N_2O values in the samples under normal conditions in the pig units.

Emission from the wastewater pulification for liquid part of swine waste

About 5% of the influent nitrogen was emitted as N_2O gas using the conventional process under $0.5\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{d}^{-1}$ BOD loadingm and 20°C condition. Most of the N_2O was emitted during the first hours of aeration started just after daily charging. To reduce nitrous oxide (N_2O) emissions from fill-and-draw type activated sludge units treating swine wastewater, the N_2O emission was compared between the continuous aeration process (conventional process) and the intermittent aeration process. Only less than 0.05% of the influent nitrogen was emitted as N_2O gas during the intermittent aeration process both of temperature condition (5°C and 20°C). The total emission of other harmful gases (NH_3 , NO , NO_2 and CH_4) was negligible.

Emission from the composting for solid part of swine waste

The amount of harmful gas emissions from the composting process of swine waste was determined by use of an experimental composting apparatus. Forced aeration ($19.2 - 96.1 \text{ L}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{min}^{-1}$) was carried out continuously, and exhaust gases were collected and analyzed periodicaly. With weekly turning and the addition of a bulking agent in order to decrease the moisture content and increase air permeability, the temperature of most of the contents rose to 70°C and composting was complete within three to five weeks. NH_3 , CH_4 and N_2O emissions were high in the early stage of composting. About 10 to 25% of the nitrogen in the raw material was lost as NH_3 gas during swine waste composting. The emission rate of NH_3 mainly depended on the aeration rate, so that as the aera-

tion rate rose, the level of NH_3 emissions increased.

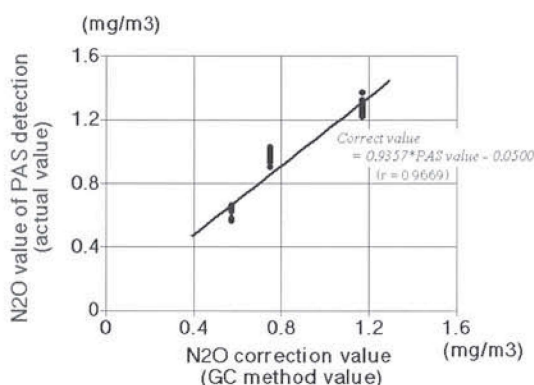
The CH_4 and N_2O emissions could be kept lower with adequate treatment at more than $40 \text{ L} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{min}^{-1}$ aeration. N_2O may be mainly the result of the denitrification of $\text{NO}_x\text{-N}$ in the additional matured compost used as a composting accelerator.

According to those results from this experimental studies,

1) The NH_3 , N_2O and CH_4 emissions from the pig breeding unit and its manure contributes (a full fattening period of 8 weeks) were estimated at 305 - 506, 20 - 53 and 270 - 438 g/pig respectively.

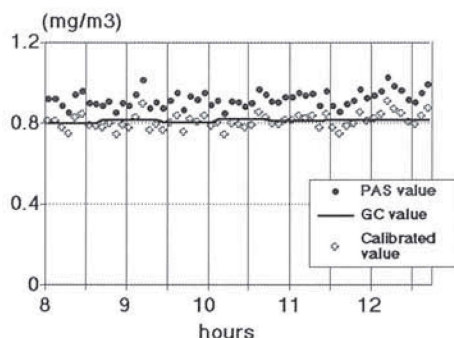
and,

2) Those emission could be reduced by adequate manure contributes, such as ; weekly discharge of slurry in pig unit, enproyment of Intermittent aeration process for wastewater treatment and keeping of aerobic coudition during pig manure composting with adequate aeration.



N2O Calibration line for PAS data

図 A-1 亜酸化窒素の補正 (GC 法とIPD法)



Comparative figure of the results of calibration for PAS actual value of N_2O and GC value in the pig confinement building

図 A-2 試験期間中の実際の測定値について補正を行った例

添付資料 1

IPD測定値の補正について

アンモニア、メタンおよび亜酸化窒素はInfrared Photoacoustic Detector (IPD, Bruel&Kjaer, Multi-gas Monitor Type 1302, Multipoint Sampler and Doser Type 1303) を用いて連続測定した。この測定法はFourier Transform Infrared (FTIR) spectroscopy detectors の一種であり、数秒間隔の測定が可能であるなど操作性に優れる。しかし、メタンと亜酸化窒素の測定値 (絶対値) は舎内の二酸化炭素および水蒸気の干渉を受ける。このため舎内の空気を定期的に採取してガスクロマトグラフ (メタンは Flame Ionization Detector (FID)、亜酸化窒素は Electron Capture Detector (ECD)) で計測し、測定値を補正した。下記に具体的な補正に用いた亜酸化窒素の例を示す。

謝辞

本論を書き始めるきっかけを作って頂き、ねばり強いご指導を頂いた北海道大学大学院農学研究科松田従三教授に感謝致します。先生との出会いがなければこの論文が書かれることは決してありませんでした。

北海道大学大学院農学研究科伊藤和彦教授、同研究科大久保正彦教授ならびに同研究科波多野隆介教授に感謝申し上げます。丁寧な御校閲により、なんとか本論をまとめ上げることができました。

堆肥化、汚水処理に関しては、諸先輩方のご指導、同僚からの有意義な指摘のもとで試験を設計し、多くの研修生の力添えによって遂行することができました。

農林水産省農業研究センターの原田靖生先生、同省畜産試験場の羽賀清典先生、田中博先生、代永道裕先生、生物系特定産業技術推進機構の伊澤敏彦先生 (現 株式会社イー・エス・アイ)、福森功先生、北村誠先生、西村洋先生、道宗直昭先生、農業環境技術研究所の越野正義先生、真弓洋一先生 (いずれも当時、現全国農業協同組合連合会)、竹内誠先生には、農業系の、特に畜産系におけるふん尿に関わる取り扱いのご指導を頂きました。

畜舎の測定に関しては、酪農学園大学の干場信司先生のご示唆とデンマークの畜産試験場 (現在農学研究科施設工学部) の多くの方の力添えを頂きました。共同実験者である Dr. Hans Benny Rom, Dr. Preven Dahl と Dr. Sven G. Sommer には、日本語でも言い表せないほど感謝しています。相手方のセクション責任者の Dr. Jan Strom と Dr. Hisamitsu Takai, には試験設計に関わる多

くの助言を頂きました。

本論文を書くことは、小生の本来業務を職場の気のいい同僚に押しつけることによって達成されました。田中康男室長、黒田和孝主任研究官ならびに住谷啓子さんには特にご迷惑をおかけ致しました。ここに成果を表す多くの試験の共同研究者である花島大氏、和木美代子氏、福本泰之氏、本試験場の業務科の皆様にご感謝いたします。

本研究に関わった研修生の皆様、学生の皆様にもあわせてお礼申し上げます。

最後に、ようやく父親の仕事を理解しようと努め始めたみつはと真人、妻の典子には、これまでの協力に感謝するとともに、本論が世に出たことをともに喜んでくれたらとても幸せです。

2001年 春 長田 隆

Environmental load gas emissions from fattening swine breeding and its waste treatment

Takashi Osada

Department of Feeding and the Environment

Summary

Recently, great concern has gathered in generating from the livestock farm of environmental load gases, such as ammonia (NH_3), nitrous oxide (N_2O) and methane (CH_4). In order to calculate the total amount of each gas per capita which occurs from swine waste, three processes considered to be the main generation sources of each gas was examined.

According to the results of those experimental studies, 1) The NH_3 ($\text{NH}_3\text{-N}$), N_2O ($\text{N}_2\text{O-N}$) and CH_4 emissions from pig units during a full fattening period of 8 weeks were estimated at 149, 5.8 and 302g/head respectively. 2) The NH_3 ($\text{NH}_3\text{-N}$), N_2O ($\text{N}_2\text{O-N}$) and CH_4 emissions from swine wastewater purification were estimated at negligible, 1.8~7.4g and 10.7~37.5g/head respectively. 3) The NH_3 ($\text{NH}_3\text{-N}$), N_2O ($\text{N}_2\text{O-N}$) and CH_4 emissions from compost were estimated at 133~325g, 0.2~129g and 0.7~6.4g/head respectively. 4) The $\text{NH}_3\text{-N}$, $\text{N}_2\text{O-N}$ and CH_4 emissions from the swine keeping unit and its manure contributes (a full fattening period of 8 weeks) were estimated at 271~438, 16.5~49.4 and 270~438g/head respectively.

And, 5) Those emission could be reduced by adequate manure contributes, such as ; weekly discharge of slurry in swine unit, employment of intermittent aeration process for wastewater treatment and keeping of aerobic condition during swine manure composting.

Keywords : Ammonia, Nitrous oxide, Methane, Composting, Wastewater treatment